

DIE TEMPERATURABHÄNGIGKEIT DER KNIGHT SHIFT VON Ag UND Cd IN PALLADIUM

Inaugural - Dissertation
zur Erlangung der Doktorwürde
des Fachbereichs Physik
der Freien Universität Berlin

vorgelegt von
Bernd Spellmeyer
aus Lage/Lippe

- September 1976 -

DIE TEMPERATURABHÄNGIGKEIT DER KNIGHT SHIFT VON Ag UND Cd IN PALLADIUM

Inaugural - Dissertation
zur Erlangung der Doktorwürde
des Fachbereichs Physik
der Freien Universität Berlin

vorgelegt von
Bernd Spellmeyer
aus Lage/Lippe

- September 1976 -

DIE TEMPERATURABHÄNGIGKEIT
DER KINETIK VON
Ag UNO CO IN PALLADIUM

Inaugural - Dissertation
zur Erlangung des Doktorgrades
des Philosophischen Fakultät
der Universität Leiden



1. Gutachter: Prof. Dr. K.H. Lindenberger

2. Gutachter: Prof. Dr. D. Quitmann

Tag der Promotion: 20.12.1976

Zusammenfassung

Diese Arbeit beschreibt Messungen der Knight Shift von Silber- und Cadmiumatomen in Palladium mit der DPAD-Methode. Dazu werden magnetische Momente isomerer Zustände in Silber- und Cadmium-Isotopen benutzt, deren Messungen zunächst dargestellt sind.

Die Ergebnisse der Messungen an isomeren Zuständen in den Silberisotopen $^{108,110}\text{Ag}$ sind:

$$^{108}\text{Ag}(215 \text{ keV}, 3^+), T_{1/2} = 54(5) \text{ ns}, \mu = +3.88(2) \text{ n.m.}$$

$$Q < 0.5 \text{ b}$$

$$^{110}\text{Ag}(118.65 \text{ keV}, 3^+, T_{1/2} = 37(5) \text{ ns}, \mu = +3.84(6) \text{ n.m.}$$

Die Halbwertszeiten und die neu bestimmten magnetischen Momente erlauben, die Übergänge in die entsprechenden Termschemata einzuordnen und ihre Spins und Paritäten festzulegen.

Ein isomerer $11/2^-$ -Zustand wurde in ^{107}Cd gefunden. Halbwertszeit, magnetisches Moment und Quadrupolkopplungskonstante in metallischem Cadmium dieses Zustandes wurden bestimmt zu:

$$^{107}\text{Cd}(845 \text{ keV}, 11/2^-), T_{1/2} = 73(7) \text{ ns}, \mu = -1.04(1) \text{ n.m.}$$

$$e^2qQ/h = 134(4) \text{ MHz.}$$

Die Halbwertszeiten, Mischungsverhältnisse der γ -Übergänge, magnetischen Momente und Quadrupolmomente zeigen die große Ähnlichkeit der $11/2^-$ -Zustände in den Cd-Isotopen.

Das magnetische Moment und das Quadrupolmoment des $5/2^+$ -Zustandes in ^{111}Cd wurden neu bestimmt:

$$^{111}\text{Cd}(247 \text{ keV}, 5/2^-), \mu = -0.765(3) \text{ n.m.}$$

$$Q = 0.8(2) \text{ b.}$$

Zur Bestimmung der Knight Shift werden die isomeren Zustände in ^{108}Ag und ^{111}Cd herangezogen:

$$\text{KS}(\text{AgPd}, 80 \text{ K}) = -1.5(3) \%$$

$$\text{KS}(\text{CdPd}, 80 \text{ K}) = -0.8(3) \%$$

Die Temperaturabhängigkeit der Knight Shift ist im beobachteten Bereich von 80-1400 K proportional der Temperaturabhängigkeit der Suszeptibilität des Gastgitters Palladium. Die Ergebnisse lassen sich im Rahmen der für Palladiumlegierungen gebräuchlichen Bändermodelle erklären. Die Systematiken der Knight Shift von Fremdatomen in paramagnetischem Palladium und der magnetischen Hyperfeinfelder entsprechender Fremdatome in ferromagnetischem Nickel werden verglichen. Wie die magnetischen Hyperfeinfelder, so läßt sich auch die Knight Shift in Palladium durch die Polarisation des Gastgitters um das Fremdatom beschreiben.

Inhaltsverzeichnis

	Zusammenfassung	
1.	Einleitung	6
2.	Experimentelles	11
2.1.	Meßprinzip und Auswertung	11
2.2.	Experimenteller Aufbau	15
2.2.1.	Messungen nach der DPAD-Methode	15
2.2.2.	Messungen nach der DPAC-Methode	19
3.	Kernphysikalische Resultate	22
3.1.	Magnetische Momente kurzlebiger isomerer Zustände in ^{108}Ag und ^{110}Ag	23
3.1.1.	Messungen und Ergebnisse	24
3.1.2.	Diskussion der Ergebnisse	26
3.2.	Lebensdauer und magnetisches Moment des $11/2^-$ -Zustandes in ^{107}Cd	33
3.2.1.	Messungen und Ergebnisse	34
3.2.2.	Diskussion der Meßergebnisse	39
3.3.	Magnetisches Dipolmoment und elektrisches Quadrupolmoment des $5/2^+$ -Zustandes in ^{111}Cd	45

4.	Festkörperphysikalische Resultate	48
4.1.	Die Knight Shift	48
4.2.	Vorliegende Messungen der Knight Shift an verschiedenen Sonden in Palladium	56
4.3.	Messung der Knight Shift und ihrer Temperaturabhängigkeit von Silber und Cadmium in Palladium	67
4.3.1.	Auswahl der isomeren Kernzustände	67
4.3.2.	Einfluß der DPAD-Methode auf die Messung magnetischer Eigenschaften in Metallen	68
4.3.3.	Messungen am System <u>AgPd</u>	70
4.3.4.	Messung der Knight Shift von Cadmium in Palladium	72
4.3.5.	Messung der Knight Shift von Cadmium in Silber und Cadmium in Platin	78
4.4.	Diskussion der Messergebnisse zu Knight Shift	79
5.	Schlußbemerkung	85
	Literaturverzeichnis	86

1. Einleitung

Unter den Übergangsmetallen ist das Palladium wegen seiner Stellung zwischen den magnetisch geordneten und magnetisch ungeordneten Metallen von besonderem Interesse. Es besitzt eine sehr große magnetische Suszeptibilität, die bei tiefen Temperaturen einen anormalen Temperaturgang zeigt (HoM 52). Unter allen Metallen zeigt es eine der größten spezifischen Wärmen des Elektronengases (HoY 57). Die Bandstruktur und die Fermiflächen des reinen Metalles sind sowohl experimentell mit galvanometrischen Messungen und Messungen des de-Haas von Alphen-Effektes (AEM 64, VuP 65, Vui 65) als auch theoretisch im Rahmen verschiedener Bändermodelle (MFD 70) untersucht.

Von besonderem Interesse ist die Beobachtung lokaler Momente an Verunreinigungsatomen (CMP 62) im Palladium sowie das Auftreten des Ferromagnetismus bei sehr verdünnten Legierungen des Palladiums mit 3d- und 4d-Übergangsmetallen (ScR 67). Gerade diese Eigenschaft, "fast ferromagnetisch" zu sein, hat in den vergangenen Jahren viele experimentelle und theoretische Untersuchungen am Festkörper Palladium und seinen Legierungen ausgelöst.

Die Methoden der Hyperfeinphysik bieten die Möglichkeit, die magnetische Struktur von Festkörpern mikroskopisch zu untersuchen. Von diesen Methoden haben in letzter Zeit die Methoden der zeitlich-differentiellen Beobach-

tung der gestörten Winkelkorrelation (DPAC⁺) und der zeitlich-differentiellen Beobachtung der gestörten Winkelverteilung (DPAD⁺⁺) zu einer Vielzahl festkörperphysikalischer Ergebnisse geführt (KaW 75).

Folgende für diese Methoden spezifische Vorteile wurden dabei ausgenutzt:

a) Die Meßgröße ist die Anisotropie der γ -Strahlung der beobachteten radioaktiven Sondenkerne. Sie ist als Eigenschaft des Atomkernes weitgehend unabhängig von der festkörperphysikalischen Umgebung. Deshalb lassen sich mit den genannten Methoden z.B. die Temperaturabhängigkeiten von magnetischen Hyperfeinfeldern an Verunreinigungsatomen sehr leicht messen. Beispielhaft hierfür sind die Messungen der magnetischen Hyperfeinfeldern sehr nahe am Curiepunkt mit der DPAC-Methode an den Systemen CdNi (ReH 70) und mit der DPAD-Methode an den Systemen NiNi, CuNi, ZnNi (Zei 74).

b) Beide Methoden weisen radioaktive Strahlung nach. Wegen der hohen Nachweiswahrscheinlichkeit kann daher schon bei äußerst geringen Konzentrationen von Fremdatomen (wenige ppm) gemessen werden. Diese Meßergebnisse vervollständigen daher häufig schon vorliegende Messungen an Legierungen im Bereich niedrigster Konzentrationen.

⁺ (DPAC): time-differential observation of the perturbed angular correlation of γ -rays

⁺⁺ (DPAD): time-differential observation of the perturbed angular distribution of γ -rays following a nuclear reaction

c) Durch geeignete Wahl der Kernreaktionen oder Ausnutzen der auf den Sondenkern übertragenen Rückstoßenergie in Implantationsexperimenten können systematische Untersuchungen mit dem gleichen Sondenkern in verschiedenen Festkörpern oder mit verschiedenen Sondenkernen im gleichen Festkörper unternommen werden. Hierfür ist die große Zahl der mit der DPAD-Methode gemessenen magnetischen Hyperfeinfelder von Ni, Cu, Zn, Ga, Ge, As, Se in Nickel (Ble 70, BBL 73, BHP 74, Kro 75, MSF 68, BEH 75, BKH 72) beispielhaft.

In der vorliegenden Arbeit wird die magnetische Wechselwirkung der Fremdatome Ag und Cd in dem zum Nickel isoelektrischen Palladium untersucht. In dem starken Paramagnet Palladium werden das am Kernort des Sondenatoms wirkende Magnetfeld und seine Temperaturabhängigkeit gemessen. Dieses Magnetfeld wird durch die Polarisation der Leitungselektronen des Metalls durch ein äußeres Magnetfeld erzeugt und bewirkt z.B. in NMR-Experimenten die als Knight Shift bekannte Änderung der Resonanzfrequenz gegenüber einer nichtmetallischen, diamagnetischen Probe. Diese Größe ist in vielen Kernresonanzexperimenten an Metallen und Legierungen untersucht worden (Kni 59, Dra 67). Mit den Methoden der DPAD und DPAC wird es möglich sein, die vorliegenden Messungen an AgPd-Legierungen auf den Bereich geringster Konzentrationen zu erweitern und für die Systeme AgPd und CdPd die Temperaturabhängigkeit der Knight Shift zu messen.

Die DPAD-Methode setzt zur Messung der Knight Shift die Kenntnis isomerer Kernzustände voraus, deren kernphysikalische Größen wie Anregungsenergie, Lebensdauer, Anisotropie der γ -Strahlung, magnetisches Dipolmoment und elektrisches Quadrupolmoment bekannt sein sollten.

In den Silberisotopen ^{108}Ag und ^{110}Ag sind zwei isomere Kernzustände bekannt (GuA 71). Diese Zustände können zur Messung der Knight Shift von Ag in Palladium herangezogen werden, wenn die kernphysikalischen Größen hinreichend genau gemessen sind.

In den ungeraden Cadmiumisotopen $^{109-115}\text{Cd}$ waren bereits $11/2^-$ -Zustände bekannt. Auch im ^{107}Cd wurde ein solcher Zustand mit einer der DPAD-Methode zugänglichen Lebensdauer gefunden. Mit der Kenntnis des magnetischen Dipolmomentes dieses Zustandes wird die Zahl der der DPAD-Methode zur Verfügung stehenden Sondenkerne des Cd erweitert. Zur Messung der Knight Shift von Cd in Palladium wird der $5/2^+$ -Zustand in ^{111}Cd herangezogen. Das magnetische Moment dieses Zustandes wurde nachgemessen, und sein Quadrupolmoment aufgrund der Messungen am ^{107}Cd neu abgeschätzt. Beide Ergebnisse unterscheiden sich von bisher vorliegenden Messungen.

Die DPAD-Methode beobachtete durch Kernreaktionen erzeugte Sondenkerne. Das bedeutet, daß der Festkörper, in dem der Sondenkern sich befindet, durch die Strahlenschäden gestört ist. Dies wiederum kann zu einer elektrischen Wechselwirkung des Quadrupolmomentes des Sondenkerns mit dem durch die Störung im Gitter erzeugten Feldgradienten führen. Diese Wechselwirkung kann die Beobachtung der magnetischen Wechselwirkung überlagern und das Meßergebnis zur Knight Shift beeinflussen. Die Kenntnis der Quadrupolmomente der benutzten Zustände, bzw. der Quadrupolwechselwirkung in strahlengeschädigtem Metall ist deshalb Voraussetzung für die Messung einer

reinen magnetischen Wechselwirkung. Für die in dieser Arbeit mit der DPAD-Methode betrachteten Systeme wurde für das System $^{111}\text{CdPd}$ eine solche Wechselwirkung beobachtet, während das System $^{108}\text{AgPd}$ keine Störung durch eine Quadrupolwechselwirkung zeigte (BHP 75, Sch 75).

Die Arbeit gliedert sich in drei Teile. Nach einer kurzen Darstellung des Meßprinzips und des experimentellen Aufbaus wird über die Messung von magnetischen Dipolmomenten angeregter Zustände in $^{108,110}\text{Ag}$ und $^{107,111}\text{Cd}$ berichtet. Die Ergebnisse erlauben, die γ -Übergänge in die entsprechenden Termschemata einzuordnen, sowie die Spins und Paritäten der isomeren Zustände festzulegen. Im letzten Teil wird über die Messungen zur Knight Shift an Ag- und Cd-Verunreinigungsatomen in Palladium berichtet. Die Ergebnisse werden qualitativ im Rahmen eines Bändermodells beschrieben. Zur quantitativen Betrachtung wäre eine genaue Kenntnis der Bandstruktur verdünnter Legierungen nötig, die nicht vorliegt. Es liegt jedoch nahe, die Knight Shift an Fremdatomen in paramagnetischem Palladium mit magnetischen Hyperfeinfeldern entsprechender Fremdatome in ferromagnetischem Nickel zu vergleichen.

2. Experimentelles

2.1. Meßprinzip und Auswertung

Bei der DPAC-Methode und der DPAD-Methode wird die Winkelverteilung der γ -Strahlung beim Zerfall isomerer Kernzustände beobachtet. Dabei wird bei der DPAC-Methode die Korrelation eines γ -Quants, das einen isomeren Zustand bevölkert, zu der γ -Strahlung gemessen, die der isomere Zustand aussendet. Bei der DPAD-Methode wird der isomere Zustand durch eine Kernreaktion bevölkert, die die Kerne ausrichtet ("Alignment"), beobachtet wird die Verteilung der ausgesandten γ -Strahlung.

Die Theorie der DPAC-Methode ist in der Literatur ausführlich behandelt (FrS 65, Ste 71) und kann direkt auf die DPAD-Methode übertragen werden.

Die Intensität der γ -Strahlung läßt sich schreiben als

$$(2.1.) \quad I(\theta, t) = I_0 \cdot e^{-t/\tau} \cdot (1 + \sum_{k \geq 2} A_k G_k(t) P_k(\cos \theta)) + U$$

Die Faktoren A_k sind Anisotropiekoeffizienten, die von der Kernreaktion (DPAD-Methode), bzw. von dem den isomeren Zustand bevölkernden γ -Übergang (DPAC-Methode) abhängen. $P_k(\cos \theta)$ sind Legendre-Polynome, U ist der experimentell bedingte Untergrund. $G_k(t)$ bezeichnet die Störfunktion, die den Einfluß der Wechselwirkung zwischen den Kernmomenten und der Umgebung auf die γ -Winkelverteilung beschreibt.

Bei der magnetischen Wechselwirkung des magnetischen Momentes eines isomeren Kernzustandes, der in einem Magnetfeld mit der Larmorfrequenz ω_L gemäß

$$(2.2) \quad \omega_L = -\varepsilon \mu_N B_{\text{eff}} \hbar^{-1}$$

rotiert, ist die Intensitätsverteilung gegeben durch:

$$I(t, B_{\text{eff}}, \Theta) = I_0 e^{-t/\tau} (1 + e^{-F(t)} (b_2 \cos 2(\Theta - \omega_L t) + b_4 \cos 4(\Theta - \omega_L t))) + U$$

$$\text{mit} \quad b_2 = \frac{48A_2 + 20A_4}{64 + 16A_2 + 9A_4}, \quad b_4 = \frac{35A_4}{64 + 16A_2 + 9A_4}$$

Hier sind nur Glieder für $k=2,4$ betrachtet, $\exp(-F(t))$ beschreibt eine Dämpfung der Modulationsamplitude. Der Detektor steht in einer Ebene mit dem Teilchenstrahl (DPAD-Methode), bzw. dem den bevölkernden γ -Übergang nachweisenden Detektor (DPAC-Methode) senkrecht zum am Kernort wirkenden Magnetfeld.

Die Analyse der mit zwei Detektoren unter den Winkeln Θ und $\Theta + 90^\circ$ aufgestellten Detektoren gewonnenen Daten wird mit Hilfe der folgenden Ausdrücke durchgeführt, die mit der Methode der kleinsten Fehlerquadrate an die Meßwerte angepaßt werden:

$$(2.4.) \quad R_2(t) = \frac{I(t, B_{\text{eff}}, \Theta) - I(t, B_{\text{eff}}, \Theta + 90^\circ)}{I(t, B_{\text{eff}}, \Theta) + I(t, B_{\text{eff}}, \Theta + 90^\circ)} = \frac{b_2 \cos 2(\Theta - \omega_L t)}{1 + b_2 \cos 4(\Theta - \omega_L t)}$$

$$(2.5.) \quad R_4(t) = \frac{I(t, B_{\text{eff}}, \Theta) + I(t, B_{\text{eff}}, \Theta + 90^\circ)}{2I_0 e^{-t/\tau}}$$

Dabei wurde in (2.2.) $F(t)=0$ gesetzt. $R_2(t)$ und $R_4(t)$ geben den dominierenden Einfluß von A_2 bzw. A_4 wieder. Für $A_4 \rightarrow 0$ ergibt sich:

$$(2.6.) \quad R_2(t) = b_2 \cos 2(\Theta - \omega_L t), \quad b_2 = \frac{3A_2}{4 + A_2}$$

Das Ergebnis ist die Larmorfrequenz, die Amplitude und die Phase des Modulationsspektrums und damit bei bekanntem Magnetfeld der auf Knight Shift und diamagnetische Abschirmung zu korrigierende g-Faktor des isomeren Zustandes.

Die Störfunktion bei statischer Quadrupolwechselwirkung zwischen dem elektrischen Quadrupolmoment des isomeren Kernzustandes und dem am Kernort wirkenden elektrischen Feldgradienten wird für den Fall einer polykristallinen Probe mit axialsymmetrischem Feldgradienten ($\eta = 0$) gegeben durch die Summe

$$(2.7.) \quad G_K(t) = \sum_n s_{kn} \cos(n\omega_0 t)$$

$n\omega_0$ sind Vielfache der Übergangsfrequenz der kleinsten Hyperfeinaufspaltung. Die Stärke der Quadrupolwechselwirkung wird häufig angegeben durch die Quadrupolkopplungskonstante

$$(2.8.) \quad e^2 q Q / h = \frac{4I(2I-1)}{12\pi} \omega_0 \quad \text{für halbzahlige Spins.}$$

Zur Auswertung werden die Amplituden und Frequenzen der Störfunktion (2.7.) für den Spin $11/2$ mit Hilfe eines Programms berechnet. Die erhaltene Störfunktion wird wieder nach der Methode der kleinsten Fehlerquadrate an die Daten angepaßt.

Für die in dieser Arbeit auftretende kombinierte Wechselwirkung läßt sich bedingt durch die komplizierte Art der Quadrupolwechselwirkung zwischen dem durch Strahlenschäden hervorgerufenen Feldgradienten und dem Quadrupolmoment

des Sondenkernes keine Störfunktion analytisch herleiten. Es liegen jedoch Messungen zur Quadrupolwechselwirkung von Cd in strahlungsgeschädigtem Palladium vor (Sch 75, BEH 75), die eine numerische Berechnung der Störfunktion durch Kombination der auftretenden Quadrupolfrequenzen und der magnetischen Larmorfrequenz gestatten.

Die Knight Shift ist gegeben durch

$$(2.9.) \quad B_{\text{eff}} = (1+KS)(1-D)B_{\text{ext}}$$

wobei B_{ext} das an die Probe angelegte Magnetfeld, $(1-D)$ die Korrektur durch diamagnetische Abschirmung des Kernes bezeichnen. Durch Bestimmung der Larmorfrequenz ω_L nach (2.2.)

$$(2.10.) \quad \omega_L = -g \mu_K (1+KS)(1-D)B_{\text{ext}} \hbar^{-1}$$

läßt sich bei genügend genau bekannten g , B_{ext} und D die Knight Shift bestimmen. Gewöhnlich führt man eine Relativmessung der Larmorfrequenzen eines Kernzustandes in diamagnetischer, nichtmetallischer Umgebung ω_R und im Metall ω_M zur Bestimmung der Knight Shift durch, die sich dann aus dem folgenden Verhältnis ergibt:

$$(2.11.) \quad KS = \frac{\omega_M - \omega_R}{\omega_R}$$

2.2. Experimenteller Aufbau

2.2.1. Messungen nach der DPAD-Methode

Die Experimente wurden am 7MV van de Graaf Beschleuniger, Typ CN, des Hahn-Meitner-Institutes Berlin durchgeführt. Die im Hochspannungspol des Beschleunigers gepulsten Teilchenstrahlen (Pulsdauer: 10 ns, Wiederholfrequenz: 1 MHz) von Protonen, Deuteronen oder α -Teilchen mit Energien von ca. 6 MeV (Protonen, Deuteronen) oder 13.5 MeV (α -Teilchen) wurden durch Blenden beschnitten und mit Quadrupollinsen fokussiert. Der Brennfleck am Targetort hatte einen Durchmesser von max. 2 mm. Die integrale Stromstärke am Targetort betrug bei Messungen oberhalb 300 K ungefähr 80 nA, bei Messungen unterhalb dieser Temperatur ca. 20 nA.

Die Proben wurden aus angereichertem Isotopenmaterial hergestellt. Tabelle 2.1. gibt einen Überblick über den Anreicherungsgrad und die chemische Reinheit der verwendeten Ausgangsmaterialien.

Tabelle 2.1

Anreicherungsgrad und chemische Reinheit nach einer spektrographischen Analyse der zur Targetherstellung benutzten metallischen Pulver

Material	Anreicherungsgrad [%]	chem. Verunreinigungen [%]
^{108}Pd	98.11	Ag 0.04 Fe 0.03 Ni 0.02
^{110}Pd	99.0	Ag 0.02 andere 0.01
^{107}Ag	98.5	Mn 0.01 andere unter Nachweisgrenze
^{109}Ag	99.26	wie ^{107}Ag
^{107}Cd	82.05	Zn 0.5

Nach dem Schmelzen des metallischen Pulvers im Vakuum oder in einer Argonatmosphäre wurden die Proben zu Folien von ca. 100 mg/cm^2 gewalzt. Zur Ausheilung der durch das Walzen entstehenden Kristalldefekte wurden die Folien für mehrere Stunden bei Temperaturen ca. 100°C unterhalb des Schmelzpunktes in einer Argonatmosphäre oder im Vakuum geglüht.

Die Experimente bei hohen und tiefen Temperaturen bedingten verschiedene Targetaufbauten. Die Messungen der magnetischen Momente sowie die Messungen zur Knight Shift wurden mit der in Abb. 2.1 dargestellten Targetkammer durchgeführt.

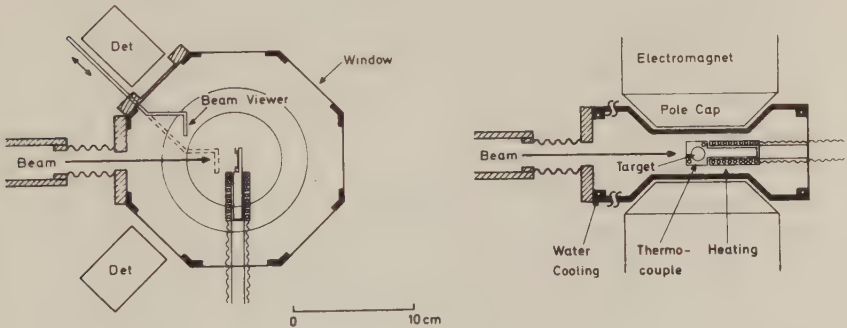


Abb. 2.1 Targetkammer für Experimente mit geheiztem Target. Der Targethalter ist leicht auswechselbar.

Die Targetfolie ist hinter einer Blende aus Tantalblech auf einen Tantalhalter aufgeschraubt. Der Halter selbst steckt in einer Widerstandsheizung, die aus einem Al_2O_3 -Rohr, einem bifilar gewickelten Heizdraht und einem weiteren Al_2O_3 -Rohr besteht. Das äußere Al_2O_3 -Rohr war mit Tantalblech als Strahlungsreflektor umschlossen. Die Temperatur wurde mit einem zwischen Tantalzylinder und Targetfolie eingepreßten Chromel-Alumel Thermoelement gemessen und durch Änderung des Heizstromes (10-50 A, max. Leistung 2 kW) eingestellt. Die Temperaturkonstanz dieser Anordnung beträgt $\pm 10^\circ\text{C}$ während einer 6h dauernden Messung. Die maximal erreichbare Temperatur liegt bei 1450 K. Um ein Erwärmen der Kammerdeckel und damit der Magnetpolschuhe zu vermeiden, sind die aus Messing gefertigten Kammerdeckel mit Wasser gekühlt. Der Targethalter kann aus der Heizvorrichtung herausgezogen und durch einen identischen Halter mit anderer Targetfolie ersetzt werden. Dabei bleiben die räumliche Geometrie und das Magnetfeld unverändert. Im Bereich des Targets (Durchmesser: 3 mm, Polschuhabstand: 14 mm, Feldstärke: 25-30 kOe) war das Magnetfeld auf besser als $5 \cdot 10^{-4}$ homogen. Die Langzeitstabilität wurde durch eine Hall-Stabilisierung gewährleistet und durch eine Reihe von Eichmessungen mit Hilfe der Larmorfrequenz des ^{19}F , $5/2^+$ bestätigt. Sie ergeben eine relative Übereinstimmung von besser als 0.1 %.

Das Magnetfeld wurde in der Regel geeicht durch die Bestimmung der Larmorfrequenz des $5/2^+$ -Zustandes im ^{19}F , dessen g-Faktor durch eine Vergleichsmessung mit der Protonenresonanz sehr genau gemessen ist (BIH 69). Die

Bestimmung unbekannter g-Faktoren ergibt sich dann unmittelbar aus dem Verhältnis der Larmorfrequenzen oder der Perioden:

$$(2.12.) \quad g = g(^{19}\text{F}, 5/2^+) \frac{\omega_L(\text{ges})}{\omega_L(^{19}\text{F})} = g(^{19}\text{F}, 5/2^+) \frac{T(^{19}\text{F})}{T(\text{ges})} ,$$

$$g(^{19}\text{F}, 5/2^+) = +1,442(3)$$

Der Targetaufbau in dieser Kammer gestattete es, die Heizanordnung durch einen gekühlten Kupferfinger eines Badkryostaten zu ersetzen. So war bei unverändertem Magnetfeld auch eine Messung bei 80 K durchzuführen.

Für Messungen im Temperaturbereich von 20 K - 300 K steht ein Verdampferkryostat zur Verfügung, an dessen Kühlfinger das Target in der schon beschriebenen Weise befestigt werden konnte. Eine ausführliche Beschreibung dieser Anordnung befindet sich in (Ber 74).

Die γ -Strahlung wurde mit NaJ(Tl)-Detektoren nachgewiesen, deren Dicke der zu messenden γ -Strahlung angepaßt war ($\emptyset$ 38 mm x 10 mm für Energien $\leq$ 250 keV; $\emptyset$ 38 mm x 50 mm für Energien $>$ 250 keV). In der Regel standen die Detektoren unter Winkeln von $\pm 135^\circ$ zur Strahlrichtung in einer Ebene senkrecht zum Magnetfeld. Die nachgeschaltete Elektronik ist die gebräuchliche "slow-fast" Koinzidenzapparatur, die an anderer Stelle ausführlich beschrieben ist (BHL 69).

2.2.2. Messungen nach der DPAC-Methode

Eine Nachmessung des magnetischen Momentes des $5/2^+$ -Zustandes im ^{111}Cd und eine Messung zur Knight Shift von Cd in Palladium und Platin wurden mit der DPAC-Methode durchgeführt. Dazu wurde eine 4-Detektor-Apparatur aufgebaut. Die vier NaJ(Tl)-Detektoren ($\emptyset$ 38 mm x 48 mm) stehen in einer Ebene senkrecht zum angelegten Magnetfeld von ca. 30 kOe unter Winkeln von $\pm 90^\circ$ und 180° zueinander. Die Elektronik der einzelnen Detektoren ist identisch der in den DPAD-Messungen benutzten. Von jedem Detektor wird ein Startsignal und ein Stoppsignal abgenommen, so daß die Winkelkorrelation eines jeden Detektors mit allen übrigen beobachtet werden kann. Das angewandte Routing-Verfahren, das die 16 verschiedenen Spektren in einem 4096 Vielkanalanalysator speichert, ist in Abb. 2.2. gezeigt.

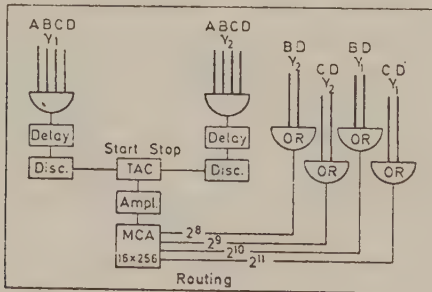


Fig. 2.2. Routing System der 4 Detektor-DPAC-Apparatur zur Speicherung der 16 verschiedenen Spektren in einem 4096 Vielkanalanalysator

Die metallischen Proben zur Bestimmung der Knight Shift von Cd in Palladium, Platin und Silber wurden durch Elektrolyse von radioaktivem ^{111}In aus saurerer In-Sulfatlösung auf Palladium-, Platin- bzw. Silberblech als Kathode und anschließendem Eindiffundieren der ^{111}In -Aktivität in das Blech bei ca. 1300 K unter Argonatmosphäre für 1-2h gewonnen. Nachdem die an der Oberfläche verbliebene Aktivität mit HCl abgeätzt war, wurde die Probe zwischen die Polschuhe eines feldstabilisierten Magneten gebracht.

Das Magnetfeld wurde mit einem Drehspul-Gaussmeter relativ zu einem temperaturstabilisierten Standardmagnet geeicht. Die Langzeitkonstanz wurde durch mehrere Eichmessungen überwacht und war besser als 0.05 %. Von gleicher Größenordnung war auch die Homogenität des Magnetfeldes über das Probenvolumen.

Der wesentliche Fehler der Messung ist gegeben durch die Nichtlinearität der Zeitskala bedingt durch die elektronische Aufnahmeapparatur (Nichtlinearität des Zeit-Amplituden-Wandlers, Fehler ca. 0.5 % - 1 %). Dieser Meßfehler kann jedoch in einer Relativmessung vernachlässigt werden, wenn mit den verwendeten Proben nahezu gleiche Zählraten der Aufnahmeapparatur erzielt werden. Darüber hinaus läßt sich in der Auswertung die Nichtlinearität berücksichtigen, sofern sie sich bei der Zeiteichung zeigen. Die Messung zur Knight Shift wurde als relative Messung durchgeführt.

Die absolute Messung des g-Faktors des $5/2^+$ -Zustandes in ^{111}Cd verlangte eine genauere Bestimmung der Zeitskala der Meßapparatur. Wegen der begrenzten Speicher-

kapazität des 4 K - Vielkanalanalysators wurde deshalb auf die hohe Statistik der eben geschilderten Aufnahme von 12 Spektren mit je 256 Kanälen verzichtet und nur 4 Spektren mit 1024 Kanälen aufgenommen. Der bei dieser Messung auftretende Fehler von 0.3 % ist wegen der hohen Genauigkeit der Magnetfeldmessung allein durch die Eichung der Zeitskala bedingt.

3. Kernphysikalische Resultate

Im folgenden Abschnitt werden die Messungen kernphysikalischer Größen, hauptsächlich magnetischer Dipolmomente, geschildert, deren Kenntnis Voraussetzung zur Messung der festkörperphysikalischen Daten mit der DPAD-Methode ist.

In dem in dieser Arbeit betrachteten Massenbereich ($A \sim 110$) werden bei den zur Verfügung stehenden Einschußenergien von 6 MeV für Protonen bzw. Deuteronen und 13 MeV für α -Teilchen Kerne gleicher oder größerer Kernladungszahl erreicht ($\Delta Z = 0, 1, 2$). Von Palladium-, Silber- und Cadmiumisotopen als Targetmaterial ausgehend, werden über (p,n)-, (d,p)- und (α ,n)-Kernreaktionen isomerer Zustände in Ag- und Cd-Isotopen bevölkert, deren magnetische Momente mit der DPAD-Methode bestimmt wurden.

Die Messung der Knight Shift von Cd in Palladium wurde mit dem $5/2^+$ -Zustand in ^{111}Cd durchgeführt. Frühere Messungen des g-Faktors dieses Zustandes erwiesen sich als ungenau, so daß eine Nachmessung des magnetischen Momentes dieses Zustandes mit der DPAC-Methode nötig war.

3.1. Magnetische Momente kurzlebiger isomerer Zustände in ^{108}Ag und ^{110}Ag

In den geraden Silberisotopen $^{108,110}\text{Ag}$ wurden neben den in der Kernphysik gut bekannten 6^+ -Isomeren (^{108}Ag : 109 keV, 127 y; ^{110}Ag : 117 keV, 207 d) Übergänge von isomeren Zuständen beobachtet, deren Energien und Lebensdauern aus der Messung der γ -Strahlung nach Neutroneneinfang bekannt sind:

$$^{108}\text{Ag}, E = 215 \text{ keV}, T_{1/2} = 54(8) \text{ ns} \quad (\text{GuA } 71)$$

$$^{110}\text{Ag}, E = 117.25 \text{ keV}, T_{1/2} = 30(5) \text{ ns} \quad (\text{KaS } 70)$$

Neben diesen Untersuchungen der Termschemata durch die γ -Strahlung liegen insbesondere zum hochenergetischen Teil der Termschemata Messungen mit Hilfe des Teilchen-nachweises nach den Reaktionen $^{107,109}\text{Ag} (d,p) ^{108,110}\text{Ag}$ vor (OSa 71, BrR 72). Andere Autoren haben darüber hinaus das Spektrum der Konversionselektronen für ^{110}Ag aufgenommen (EsR 67, Win 67, ELE 68). Kürzlich wurden von Taketani die Anregungsfunktion und die Winkelverteilung der γ -Strahlung für den Übergang im ^{108}Ag gemessen (Tak 75). Trotz der Fülle der vorliegenden Daten ist es bisher nicht gelungen, die Spins und Paritäten der isomeren Zustände, sowie die Multipolarität der Übergänge festzulegen. Die Messung der magnetischen Momente dieser Zustände kann weitere Information zur Kernstruktur geben.

3.1.1. Messungen und Ergebnisse

Die isomeren Zustände wurden über folgende Reaktionen bevölkert:

Kern	Reaktion	Q-Wert [MeV]
^{108}Ag	$^{108}\text{Pd}(p,n)$	-2.699
	$^{107}\text{Ag}(d,p)$	5.051
^{110}Ag	$^{110}\text{Pd}(p,n)$	-1.65
	$^{109}\text{Ag}(d,p)$	4.56

Bei allen Reaktionen wurde sowohl im ^{108}Ag als auch im ^{110}Ag im Bereich von 50 keV bis 800 keV nur jeweils ein verzögerter γ -Übergang beobachtet. Die Energien und die Halbwertszeiten der beiden Übergänge wurden neu bestimmt zu:

$$^{108}\text{Ag} \quad E_{\gamma} = 215(1) \text{ keV} \quad T_{1/2} = 55(5) \text{ ns}$$

$$^{110}\text{Ag} \quad E_{\gamma} = 117(1) \text{ keV} \quad T_{1/2} = 37(5) \text{ ns}$$

Diese Werte sind in Übereinstimmung mit den Messungen nach Neutroneneinfang von Gujrathi et al. (GuA 71).

Die g-Faktoren beider isomerer Zustände wurden sowohl nach (d,p)- als auch nach (p,n)-Reaktionen gemessen. In Figur 3.1. sind die Daten aus den Messungen am isomeren Zustand in ^{108}Ag , in Fig. 3.2. die Daten aus den Messungen am 117 keV Übergang im ^{110}Ag gezeigt. Die Auswertung wurde mit Hilfe der Formeln (2.6.) und (2.12.) durchgeführt. Die Ergebnisse sind in der Tabelle 3.1. zusammengefaßt.

Tabelle 3.1. Ergebnisse aus den Messungen an kurzlebigen isomeren Kernzuständen in ^{108}Ag und ^{110}Ag

Kern	Reaktion	b_2	$\omega_L / \omega_L(^{19}\text{F})$	g-Faktor
^{108}Ag	$^{108}\text{Pd}(p,n)$	+0.053(1)	0.889(3)	+1.294(6)
	$^{107}\text{Ag}(d,p)$	+0.049(1)	0.898(3)	
^{110}Ag	$^{110}\text{Pd}(p,n)$	-0.045(2)	0.87(1)	+1.28(2)
	$^{109}\text{Ag}(d,p)$	-0.040(2)	0.89(1)	

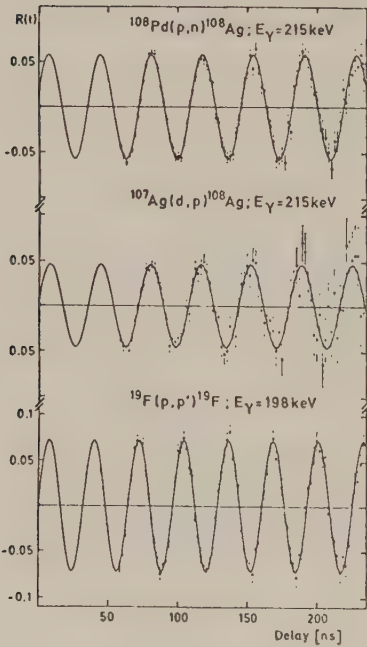


Fig. 3.1

Modulationsspektrum der 215 keV- γ -Strahlung nach den Kernreaktionen $^{108}\text{Pd}(p,n)$ und $^{107}\text{Ag}(d,p)$. Das Modulationsspektrum der 198 keV- γ -Strahlung des ^{19}F dient zur Eichung des Magnetfeldes.

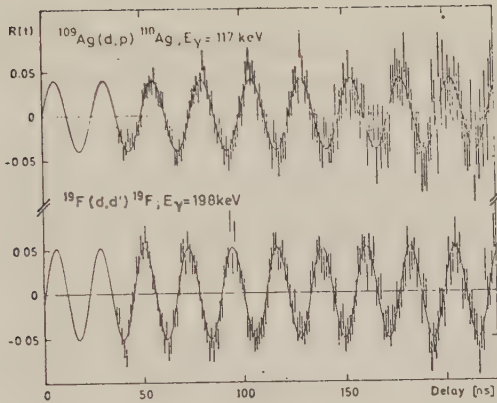


Fig. 3.2. Modulationsspektrum der 117 keV- γ -Strahlung nach der Kernreaktion $^{109}\text{Ag}(d,p)$

Zur Ableitung der korrigierten g-Faktoren müssen die Messungen auf die Knight Shift und die diamagnetische Abschirmung korrigiert werden. Die Knight Shift von Ag in Silber ist aus NMR-Messungen zu +0.522 % bekannt (Dra 59), die diamagnetische Abschirmung ist mit + 0.5 % abgeschätzt (Lam 41). Dann ergeben sich die in Tabelle 3.1. angegebenen Werte für die g-Faktoren aus den (d,p)-Messungen.

3.1.2. Diskussion der Ergebnisse

^{108}Ag

Der beobachtete Übergang im ^{108}Ag ist der Energie und Lebensdauer nach mit dem nach Neutroneneinfang gemessenen gleich. Auch wurde in den (n, γ)-Experimenten kein weiterer Übergang gleicher Lebensdauer beobachtet. Des-

halb sollte der isomere Zustand direkt in den 1^+ -Grundzustand des ^{108}Ag zerfallen und eine Energie von 215 keV haben.

Die beobachtete Halbwertszeit ist nur mit einer Multipolordnung des 215 keV Übergangs von $L \leq 2$ verträglich. Für den isomeren Zustand ergeben sich daraus die möglichen Spinwerte $I \leq 3$.

Widersprüchliche Aussagen zu diesem Zustand liegen aus den Messungen der Protonenspektren vor. Während zwei Arbeiten diesen Zustand bei 215 keV nicht beobachteten (Maz 57, BrR 72), gibt die Messung von Salazar (OSa 71) eine extrem schwache Linie bei 215 keV an. Die relative Intensität dieses Überganges zu dem 80 keV Übergang des ersten angeregten Zustandes in den Grundzustand ist mit 0.39:100 angegeben. Die Winkelverteilung dieser Linie wurde nicht untersucht. Da dieser Zustand nicht in der Stripping-Reaktion bevölkert wird, können wir ihm positive Parität zuordnen.

Die hier durchgeführte Messung der gestörten Winkelverteilung der 215 keV- γ -Strahlung ergibt positive Anisotropie. Ebenfalls positive Anisotropie wurde bei der Messung der Winkelverteilung der γ -Strahlung von Take-tani festgestellt (Tak 75). Zusammen mit den Ergebnissen der Messung der Anregungsfunktion des gleichen Autors läßt sich dem isomeren 215 keV Zustand im ^{108}Ag der Spin 3 zuordnen.

Der g-Faktor dieses Zustandes wird gemeinsam mit dem des isomeren Zustandes im ^{110}Ag diskutiert.

^{110}Ag

Ausführliche Messungen zum Termschema des ^{110}Ag wurden von Kane et al. (KaS 70) durchgeführt. Sie konnten bei 1.28 keV einen 2^- -Zustand nachweisen, der mit einer Lebensdauer von 600 ns in den 1^+ -Grundzustand zerfällt. Ebenfalls zeigen diese Messungen, daß der isomere 6^+ -Zustand bei 117.69 keV nur 1 keV niedriger liegt als der kurzlebige isomere Zustand mit einer Lebensdauer von 37 ns. Dieser zerfällt in den ersten angeregten 2^- -Zustand bei 1.28 keV. Die Energie der γ -Strahlung ist $E_\gamma = 117.37$ keV.

Estulin et al. (EsR 67) und Winkler (Win 67) haben Koeffizienten der K-Konversion aus dem Verhältnis der Intensitäten K-X: γ im Spektrum zeitverzögerter γ -Strahlung abgeleitet. Ihre Messungen deuten auf eine Multipolarität M1 für den 117.37 keV Übergang hin. Die Messungen der Konversion von Elze et al. (ElE 68) sprechen jedoch für eine Multipolordnung E1. Die widersprüchlichen Ergebnisse sind zurückzuführen auf eine fehlende Korrektur bei den Messungen der erstgenannten Autoren. Für niedrige Elektronenenergien muß die gemessene Intensität bedingt durch den Aufbau des Spektrometers korrigiert werden. Diese Korrektur ist bei Elze et al. angebracht. Nimmt man für den Übergang die Multipolarität E1 an, so kann der isomere Zustand die Spinwerte 1^+ , 2^+ , 3^+ besitzen.

Die Anisotropie der γ -Strahlung des beobachteten Übergangs ist negativ. Nach den Rechnungen von Yamazaki ist dies verträglich mit einem reinen E1 Übergang und den Spinfolgen $3^+ \rightarrow 2^-$ und $1^+ \rightarrow 2^-$ einem gemischten $2^+ \rightarrow 2^-$,

E1+M2 Übergang. In dem letzteren Fall würde das Mischungsverhältnis des $2^+ \rightarrow 2^-$ Überganges $\mathcal{M}(M2/E1) < 0.4$ sein, was mit den Messungen der Konversionselektronen von Elze et al. unvereinbar ist. Dieser Fall kann daher ausgeschlossen werden.

Die Annahme der positiven Parität des Zustandes bei 118.65 keV wird auch in ^{110}Ag durch die Messung des Protonenspektrums nach der (d,p) Reaktion bestätigt. Auch dieser Zustand wird nicht beobachtet (OSa 71, BrR 72).

Die g-Faktoren beider isomerer Zustände sind positiv und groß. In dieser Massengegend sind nur wenige solcher g-Faktoren in u-u Kernen bekannt (ShL 75). Diese Zustände besitzen alle positive Parität und die Spinwerte 1, 2 oder 5. Für Protonenzahlen $Z > 50$ werden diese Spinwerte durch die Kopplung eines $(1g_{9/2})^{n_{9/2}, 7/2}$ Protonenzustandes mit einem $2d_{5/2}$ oder $2s_{1/2}$ Neutron erklärt. Die g-Faktoren werden zufriedenstellend beschrieben durch die Kopplung empirischer g-Faktoren benachbarter ug- und gu-Kerne entsprechend der Kopplungsregel

$$(3.1.) \quad g = \frac{1}{2}(g_{\pi} + g_{\nu}) + \frac{1}{2}(g_{\pi} - g_{\nu}) \frac{j_{\pi}(j_{\pi}+1) - j_{\nu}(j_{\nu}+1)}{I(I+1)}$$

wobei j_{π} (j_{ν}) und g_{π} (g_{ν}) die Spins und effektiven g-Faktoren der Protonen- bzw. Neutronen-Zustände bezeichnen. Nach dieser Kopplungsregel können g-Faktoren aus denen bekannter benachbarter Zustände errechnet werden.

Die Werte für die empirischen Einteilchenzustände wurden dabei aus der Tabelle (ShL 75) genommen. Für den Neutronenzustand $1g_{7/2}$ liegt kein experimenteller Wert vor. Hier wird $g_{\nu}(7/2) = 0.2$ angenommen. Die Tabelle 3.2 zeigt die Ergebnisse dieser Rechnungen: nur die Zustände positiver Parität führen zu großen und positiven g-Faktoren. Ein Vergleich mit dem gemessenen Wert schließt die Konfigurationen, die zu einem 1^+ Zustand führen, weitgehend aus.

Tabelle 3.2. g-Faktoren für verschiedene mögliche Konfigurationen von Zuständen mit Spin und Parität $I^{\pi} = 1^{\pm}, 2^{\pm}, 3^{\pm}$ berechnet nach Formel (3.1.)

I	Protonenzustand	Neutronenzustand			
		$ 2d_{5/2}\rangle$	$ 2s_{1/2}\rangle$	$ 1g_{7/2}\rangle$	$ 2d_{3/2}\rangle$
1^+	$ 1g_{9/2}\rangle$			3.0	
	$ (1g_{9/2})^n_{7/2}\rangle$	3.3		0.7	
2^+	$ 1g_{9/2}\rangle$	2.5		1.5	
	$ (1g_{9/2})^2_{7/2}\rangle$	1.4		0.7	1.7
3^+	$ 1g_{9/2}\rangle$	1.5		1.1	1.5
	$ (1g_{9/2})^n_{7/2}\rangle$	0.9	1.6	0.7	1.3
1^-	$ 2p_{1/2}\rangle$		-0.7		0.6
2^-	$ 2p_{1/2}\rangle$	-0.3			
3^-	$ 2p_{1/2}\rangle$	-0.3		0.3	

Dem isomeren Zustand bei 118,65 keV im ^{110}Ag können also Spin und Parität von $I^\pi = 3^+$ zugeordnet werden. Er zerfällt über einen E1 Übergang in den 2^- Zustand. Der vergleichbare 3^+ Zustand bei 215 keV im ^{108}Ag zerfällt über einen E2 Übergang in den 1^+ -Grundzustand. Dieser Zerfall ist wegen der größeren Energie um einen Faktor 30 wahrscheinlicher als der $3^+ \rightarrow 2^-$ Übergang.

In Fig. 3.3. ist der niederenergetische Teil der Termschemata der untersuchten Kerne gezeigt.

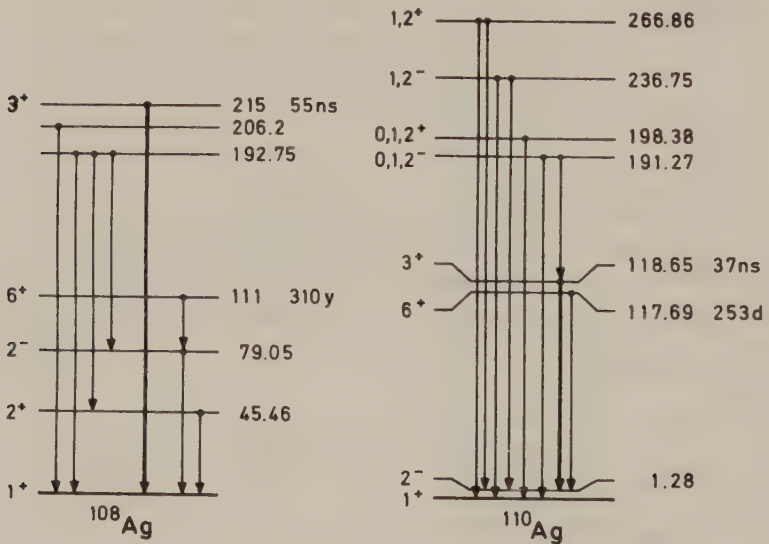


Abb. 3.3. Niederenergetische Termschemata von ^{108}Ag und ^{110}Ag . Spin und Parität der isomeren Zustände (^{108}Ag , 215 keV; ^{110}Ag , 118.65 keV) entsprechen den Ergebnissen dieser Arbeit.

Abschließend soll hier noch ein Experiment erwähnt werden, welches die Beobachtung der Quadrupolwechselwirkung von ^{108}Ag in strahlengeschädigtem Palladium zum Ziele hatte. Der experimentelle Aufbau und das Target glichen der in 4.2. beschriebenen Messung am System CdPd bei Temperaturen unterhalb 80 K. Das Ziel der Messung war eine elektrische Wechselwirkung des Quadrupolmomentes des isomeren Zustandes in ^{108}Ag mit dem durch die Fehlstellen des gestörten Kristallgitters erzeugten Feldgradienten zu messen. Dieses Experiment zeigte jedoch weder eine Abnahme der Anisotropie noch eine diskrete Quadrupolwechselwirkungsfrequenz. Wie bei den Messungen zum System CdPd ausgeführt wird, entsprechen beide Effekte einer bestimmten Stärke der Quadrupolwechselwirkung. Das negative Ergebnis dieser Messung erlaubt dennoch eine sehr grobe Abschätzung des Quadrupolmomentes des isomeren 215 keV Zustandes in ^{108}Ag durch den Vergleich der Messungen der Quadrupolwechselwirkung am System ^{111}Cd in Palladium: Unter der Annahme etwa gleicher Feldgradienten an Ag und Cd-Verunreinigungen in dem gestörten Palladiumgitter ergibt sich aus der nicht beobachteten Quadrupolwechselwirkung von ^{108}Ag in Palladium, daß das Quadrupolmoment dieses Zustandes sehr viel kleiner sein muß als das des ^{111}Cd . Die um einen Faktor 2 geringere Anisotropie des ^{108}Ag nach der Reaktion $^{108}\text{Pd}(p,n)$ gegenüber der des ^{111}Cd nach der Reaktion $^{108}\text{Pd}(\alpha,n)$ wurde durch eine hohe Meßgenauigkeit ausgeglichen. Die Annahme etwa gleicher Feldgradienten für Cd und Ag in Pd erscheint gerechtfertigt, da eine drastische Änderung der Quadrupolkopplungskonstanten bei Änderung des Verunreinigungsatoms um eine Kernladungszahl in Metallen bisher nicht beobachtet wird.

Zusammenfassung

Die magnetischen Momente der isomeren 3^+ Zustände in ^{108}Ag und ^{110}Ag wurden bestimmt zu

$$\mu(^{108}\text{Ag}, 215 \text{ keV}, 3^+) = +3.88(2) \text{ n.m.}$$

$$\mu(^{110}\text{Ag}, -18.65 \text{ keV}, 3^+) = +3.84(6) \text{ n.m.}$$

Die gemessenen g-Faktoren, Lebensdauern und Anisotropie erlauben, die isomeren Zustände in das Termschema des jeweiligen Kernes einzuordnen.

Das Quadrupolmoment im ^{108}Ag läßt sich zu $Q(^{108}\text{Ag}, 3^+) \ll 0.5b$ abschätzen.

3.2. Lebensdauer und magnetisches Moment des $11/2^-$ Zustandes in ^{107}Cd

Nach dem Schalenmodell treten isomere $11/2^-$ Zustände für $N < 82$ auf. In den ungeraden Cd-Isotopen $^{109-115}\text{Cd}$ sind diese isomeren Zustände und ihre magnetischen Momente bekannt. Einen analogen $11/2^-$ Zustand erwartet man nach Rechnungen von Kisslinger und Sorensen (Kis 63) im ^{107}Cd mit einer Energie oberhalb 500 keV und einer Lebensdauer von 100 ns.

3.2.1. Messungen und Ergebnisse

Nach den Kernreaktionen $^{107}\text{Ag}(p,n)$, $^{106}\text{Cd}(d,p)$ und $^{104}\text{Pd}(\alpha,n)$ wurden in den zeitverzögerten Energiespektren zwei γ -Übergänge mit Energien von 205 keV und 640 keV beobachtet. Der niederenergetische Übergang kann dem Übergang des ersten angeregten $7/2^+$ Zustandes in den $5/2^+$ Zustand zugeordnet werden. Daher kann der isomere Zustand bei 845 keV eingeordnet werden, der über eine $11/2^- \xrightarrow{640 \text{ keV}} 7/2^+ \xrightarrow{205 \text{ keV}} 5/2^+$ Kaskade zerfällt. Spin und Parität werden zunächst durch den Vergleich mit den anderen isomeren $11/2^-$ Zuständen nahegelegt, deren Daten in Fig. 3.4. angegeben sind. Die Messungen des magnetischen Momentes, der Lebensdauer und der elektrischen Quadrupolwechselwirkung werden diese Zuordnung bestätigen.

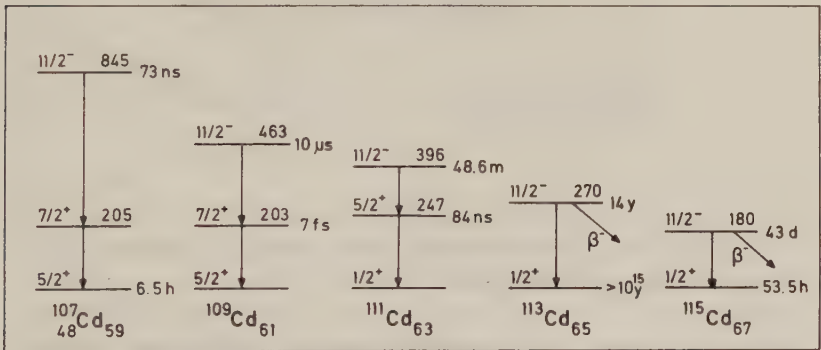


Fig. 3.4. $11/2^-$ Zustände in den ungeraden Cd-Isotopen

Die Messungen der Lebensdauer dieses Zustandes wurde an dem 205 keV und auch an dem 640 keV Übergang nach den Reaktionen $^{107}\text{Ag}(p,n)$ und $^{104}\text{Pd}(\alpha,n)$ durchgeführt. Als gemitteltetes Ergebnis aus diesen Messungen ergibt sich:

$$T_{1/2}(^{107}\text{Cd}, 11/2^-, 845 \text{ keV}) = 73(7) \text{ ns}$$

Dieses Ergebnis ist in Übereinstimmung mit kürzlich von Hagemann et al. (HaB 73) und Nyman et al. (NyJ 73) veröffentlichten Werten. Fig. 3.5. zeigt die Messung der Lebensdauer nach der $^{104}\text{Pd}(\alpha, n)$ Reaktion.

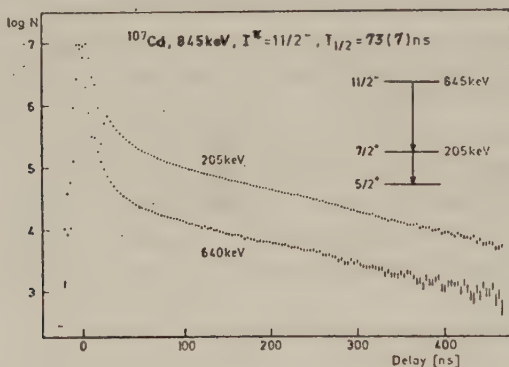


Fig. 3.5. Zeitspektren der 640 keV und 205 keV γ -Strahlung nach dem Zerfall des isomeren $11/2^-$ Zustandes in ^{107}Cd .

Eine Messung der Lebensdauer oder des magnetische Momentes nach der $^{106}\text{Cd}(d, p)$ Reaktion wurde nicht durchgeführt, weil durch die konkurrierende (d, n) Reaktion ein isomerer Zustand im ^{107}In (678.5 keV, $T_{1/2} = 52 \text{ sec}$ (NyJ 73)) angeregt wird, der die zu untersuchende 640 keV γ -Strahlung im zeitverzögerten Spektrum stark überdeckt.

Der g-Faktor konnte nach den Reaktionen $^{107}\text{Ag}(p, n)$ und $^{104}\text{Pd}(\alpha, n)$ an beiden Übergängen gemessen werden, da das Zwischeniveau eine Halbwertszeit $T_{1/2} = 7 \text{ fs}$ besitzt. Die Daten sowie der angepaßte Ausdruck nach Formel (2.5.)

sind in Abb. 3.6. gezeigt. Das angelegte Magnetfeld wurde wiederum durch die Messung der Larmorfrequenz des $5/2^+$ Zustandes im ^{19}F geeicht. In Tabelle 3.3. sind die Ergebnisse zusammengefaßt.

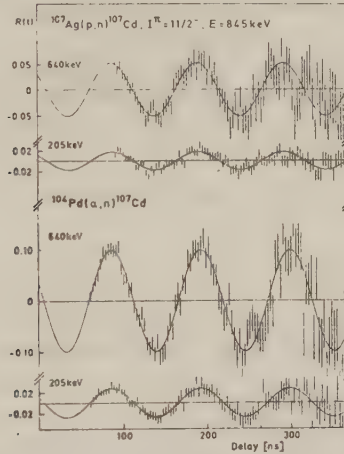


Fig. 3.6. Modulationsspektren der 640 keV und 205 keV γ -Strahlung nach den Kernreaktionen $^{104}\text{Pd}(\alpha, n)$, $^{107}\text{Ag}(p, n)$

Tabelle 3.3. Experimentelle Ergebnisse aus den Messungen des g-Faktors des $11/2^-$ Zustandes in ^{107}Cd

Reaktion	$\omega_L(^{107}\text{Cd})/\omega_L(^{19}\text{F})$	$A_{22}(205 \text{ keV})$	$A_{22}(640 \text{ keV})$
$^{107}\text{Ag}(p, n)$	0.1332(15)	-0.023(2)	-0.069(7)
$^{104}\text{Pd}(\alpha, n)$	0.1300(15)	-0.037(4)	-0.13(1)

Zur Ableitung des magnetischen Momentes wird eine diamagnetische Korrektur +0.48 % (Kop 58) angenommen. Die Knight Shift von Cd in Palladium läßt sich mit -1.0(5)%, die von Cd in Silber mit +0.5(5)% aus Daten benachbarter Systeme abschätzen. Mit diesen Korrekturen ergibt sich für den g-Faktor des $11/2^-$ Zustandes:

$$g(^{107}\text{Cd}, 845 \text{ keV}, 11/2^-) = -0.189(2)$$

was einem magnetische Moment von

$$\mu(^{107}\text{Cd}, 845 \text{ keV}, 11/2^-) = -1.04(1) \text{ n.m.}$$

entspricht.

Das negative Vorzeichen des g-Faktors kann leicht aus Fig. 3.6. abgelesen werden. Wegen der größeren Ablenkung des $\angle$ -Teilchenstrahls im externen Magnetfeld ändert sich die Phase des Modulationsspektrums. Aus der Phasenverschiebung läßt sich auf die Drehrichtung des Kernspins und damit auf das Vorzeichen des g-Faktors schließen.

Dieser Zustand bietet die Möglichkeit, die Quadrupolwechselwirkung des Quadrupolmomentes mit dem im Cadmiummetall am Kernort des Cadmium wirkenden Feldgradienten zu messen. Diese Messung wurde mit Hilfe eines metallischen ^{106}Cd Targets bei Einschußenergien von ca. 12 MeV Deuteronen durchgeführt. Entscheidend für den Erfolg dieser Messung war die hohe Einschußenergie der Deuteronen, da der Wirkungsquerschnitt für die (d,p) Reaktion mit zunehmender Energie steiler ansteigt als der der (d,n) Reaktion. Ein Versuch bei 6 MeV Einschußenergie zeigte keine Quadrupolstörung.

Das Target war auf 510 K geheizt, um die durch den Teilchenbeschuß entstehenden Strahlenschäden schnell ausheilen zu lassen. Der Einfluß der Strahlenschäden auf die Quadrupolwechselwirkung wurde für das ähnliche System $^{111}\text{CdCd}$ von Bleck et al. (BlB 72) untersucht.

Die Figur 3.7. zeigt das erhaltene Modulationsspektrum mit der angepaßten Funktion nach Formel (2.8.). Als Ergebnis ergibt sich die Quadrupolkopplungskonstante

$$\frac{e^2 Q q}{h} = 134(4) \text{ MHz.}$$

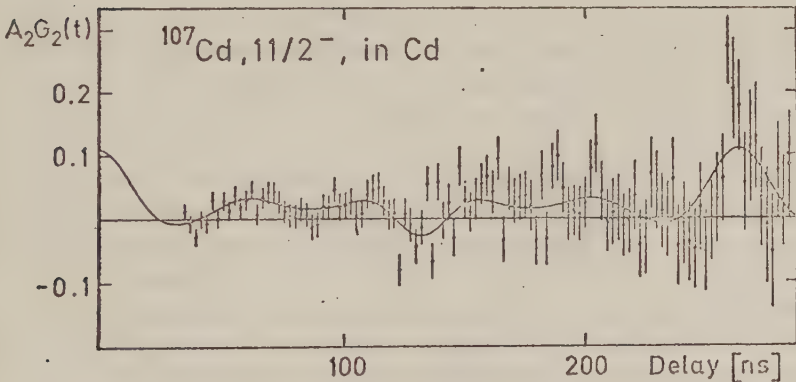


Fig. 3.7. Quadrupolwechselwirkung des $11/2^-$ Zustandes von ^{107}Cd in Cadmium-Metall

3.2.2. Diskussion der Meßergebnisse

Der isomere Zustand im ^{107}Cd bei 845 keV zerfällt über den $7/2^+$ ersten angeregten Zustand in den $5/2^+$ Grundzustand. Ein Vergleich der gemessenen Halbwertszeit mit den Einteilchen-Übergangswahrscheinlichkeiten legt für den 640 keV Übergang eine Multipolarität M2 nahe. Die Übergangswahrscheinlichkeit ist um den Faktor 20 geringer als die Moszkowski-Abschätzung. Der gleiche Verzögerungsfaktor wurde für den $11/2^- \rightarrow 7/2^+$ Übergang im ^{109}Cd beobachtet (BlF 71, Sem 72).

Der gemessene K-Konversionskoeffizient dieses Überganges, $\alpha_K = 1.08(12) \cdot 10^{-2}$ (NyJ 73) bestätigt die Multipolarität M2. Dem isomeren Zustand können deshalb Spin und Parität $11/2^-$ zugeordnet werden.

Rivier et al. (RiM 71) beobachteten einen 728 keV γ -Übergang in Koinzidenz mit dem 205 keV Übergang zum Grundzustand. Sie ordneten deshalb einem Zustand bei 933 keV den Spin $11/2^-$ zu. Die negative Parität wurde dabei aus Messungen des $\log ft$ -Wertes des β^+ -Zerfalls des ^{107}In abgeleitet. Der Konversionskoeffizient (NyJ73) sowie die angegebene obere Grenze der Halbwertszeit dieses Überganges $T_{1/2} < 10$ ns widersprechen jedoch einem Übergang der Multipolarität M2 und deshalb der negativen Parität dieses Zustandes. Aus der stark ansteigenden Anregungsfunktion des 933 keV Zustandes und durch neuere γ - γ Koinzidenzmessungen läßt sich diesem Zustand der Spin $11/2^+$ zuordnen (NyJ 73).

Für den 640 keV Übergang der Multipolarität M2 und den 205 keV Übergang der Multipolarität M1 wird eine dem Vorzeichen nach verschiedene Anisotropie der γ -Strahlung erwartet. Bei der entsprechenden $11/2^- \rightarrow 7/2^+ \rightarrow 5/2^+$ Kaskade in ^{109}Cd wurde verschiedene Anisotropie der γ -Übergänge beobachtet (Sem 72). Das Experiment an ^{107}Cd zeigt jedoch für beide Übergänge negative Anisotropie. Da eine M2-E3 Mischung für den 640 keV Übergang unwahrscheinlich ist, können wir für den $7/2^+ \rightarrow 5/2^+$, 205 keV Übergang eine starke Mischung annehmen. Aus dem Verhältnis der Anisotropiewerte A_{22} und den Rechnungen von Yamazaki (Yam 67) läßt sich das Mischungsverhältnis $\delta(E2/M1) = +0.25$ oder 28 berechnen. Nur der erste Wert ist in Übereinstimmung mit den Messungen der Konversionselektronen für diesen Übergang $\alpha_K/\alpha_L = 7.9(5)$ (NyJ 73). Abbildung 3.8. zeigt eine parametrische Darstellung der Anisotropie A_{22} der 640 keV-205 keV γ -Kaskade. Mit der Lebensdauer des $7/2^+$ Zustandes von $\tau = 1.03$ ns (MeR 73) erhält man für die reduzierte partielle Übergangswahrscheinlichkeit $B(E2; 7/2 \rightarrow 5/2) = 115(10) e^2 \cdot \text{fm}^4$.

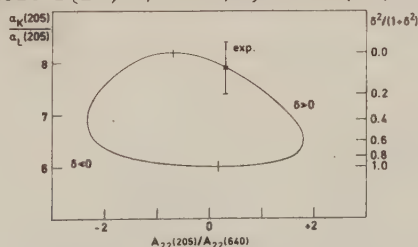


Fig. 3.8. Parametrische Darstellung des Verhältnisses der α_K/α_L Konversionskoeffizienten und des Verhältnisses der Anisotropiewerte A_{22} der 205 keV und 640 keV γ -Strahlung. Der implizite Parameter, an der rechten Skala eingetragen, ist der elektrische Quadrupol-Anteil $\delta^2/(1+\delta^2)$, der dem 205 keV M1 Übergang beigemischt ist.

Die elektromagnetischen Eigenschaften der $7/2^+ \rightarrow 5/2^+$ Übergänge sind in Tabelle 3.4. zusammengefaßt.

Tabelle 3.4. Elektromagnetische Eigenschaften von $7/2^+ \rightarrow 5/2^+$ Übergängen in den leichten Cd-Isotopen.

Kern	E_i [keV]	τ [ns]	$\delta^2(E2/M1)$	$B(M1; \frac{7}{2} \rightarrow \frac{5}{2})$		$B(E2; \frac{7}{2} \rightarrow \frac{5}{2})$		
				exp.	theo. a)	exp.	theo.g)	theo.h)
^{105}Cd	131 ^{a)}	2.52(15) ^{a)}		0.0079(5)	0.008			
^{107}Cd	205 ^{b)}	1.03(5) ^{a)}	0.064(4) ^{b)}	0.0060(3)	0.006	115(10)	4	
^{109}Cd	203 ^{c)}	$(52^{+9}_{-6}) \times 10^{-3} \text{ e)$	0.005 ^{c)}	0.13 (2)	0.08	230	31	117
^{111}Cd	172 ^{d)}	0.17(4) ^{f)}	0.021(2) ^{d)}	0.55 (14)		560(150)	47	195

Die reduzierten Übergangswahrscheinlichkeiten sind mit den Einteilchenwerten zu vergleichen:

$$B(M1, 7/2 \rightarrow 5/2)_{\text{s.p.}} = 1.5 (\text{n.m.})^2$$

$$B(E2, 7/2 \rightarrow 5/2)_{\text{s.p.}} = 4.5 e^2 \cdot \text{fm}^4$$

Ref. a) (MeR73), b) diese Arbeit, c) (Sem 72)

d) (Ste 56), e) (BeB 69), f) (SpS 64)

g) (Sor 64), h) (ReS 70)

Die $B(M1)$ -Werte der 1-verbotenen $7/2^+ \rightarrow 5/2^+$ Übergänge wurden von Meyer et al. im Rahmen eines Modells mit schwacher Kopplung durch die Einführung eines Tensor-Terms in den effektiven Operator des magnetischen Momentes sehr gut erklärt (MeR 73). Die $B(E2)$ -Werte sind von Sorensen (Sor 64) und Reehal und Sorensen (ReS 70) in einem Modell

mit Paarungskraft berechnet. Die Ergebnisse dieser Rechnungen sind mit experimentellen Daten in der Abbildung 3.9. zusammengefaßt. Die Übereinstimmung ist gut, jedoch ist die von der Theorie vorhergesagte starke Abnahme von $B(E2) / B(E2)_{s.p.}$ bei $N = 59$ bei den experimentellen Werten nicht so ausgeprägt.

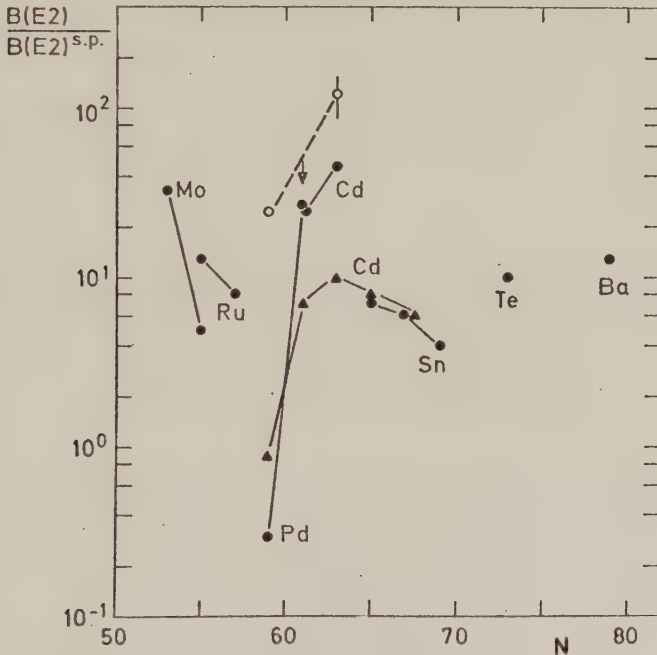


Fig. 3.9. Die Verhältnisse von $B(E2)/B(E2)_{s.p.}$ nach den Rechnungen von (Sor 64) $\blacktriangle$ und (ReS 70) $\bullet$ mit experimentellen Daten $\circ$.

Ein Vergleich der magnetischen Momente der $11/2^-$ Zustände in den ungeraden Cd-Isotopen zeigt, daß die Werte innerhalb 0.1 n.m. übereinstimmen. Da die betrachteten

Niveaus als Einteilchenzustände angesehen werden können, ist es sinnvoll, ihre magnetischen Momente im Rahmen der Theorie von Noya, Arima und Horie (NAH 58) zu diskutieren. Dieses Modell berücksichtigt Korrekturen zum Schmidtwert ($\mu_s = -1.91 \text{ n.m.}$) aufgrund von Konfigurationsmischungen durch die Einführung einer d -förmigen Restwechselwirkung zwischen den Nucleonen. Legt man die Konfiguration $\nu(1g_{7/2})^4 (2d_{5/2})^4 (1h_{11/2})^1$ und $\pi(1g_{7/2})^8$ außerhalb der abgeschlossenen $1g_{9/2}$ -Schale zugrunde, so berechnet sich das magnetische Moment zu $\mu_{\text{NAH}} = -1.02 \text{ n.m.}$ Innerhalb der vom Modell gegebenen Genauigkeit ist dies eine gute Übereinstimmung mit dem experimentellen Wert $\mu_{\text{exp}} = -1.04(1) \text{ n.m.}$

Erweitert man die Rechnungen nach dem Modell von Noya et al. auf die anderen $11/2^-$ Zustände der ungeraden Cd-Isotope, so kann nur schwer die Konstanz der experimentellen Werte durch ein sinnvolles Auffüllen der Neutronenschalen reproduziert werden. Riegel et al. (RiB 73) haben die Rechnungen von Noya et al. erweitert und in das Konfigurationsmischungsmodell experimentell bestimmte Energienenner und Besetzungszahlen eingeführt. Innerhalb dieser Rechnungen wurde auch das hier bestimmte magnetische Moment des $11/2^-$ Zustandes in ^{107}Cd behandelt. Die Rechnungen verbessern die theoretisch abgeleiteten Werte und geben insbesondere die Konstanz der magnetischen Momente für ^{107}Cd - ^{115}Cd wieder. In Abbildung 3.10 sind die Rechnungen mit den experimentellen Werten verglichen. In der Tabelle 3.5. sind die Besetzungszahlen sowie die experimentellen Werte der magnetischen Momente der $11/2^-$ Zustände zusammengestellt.

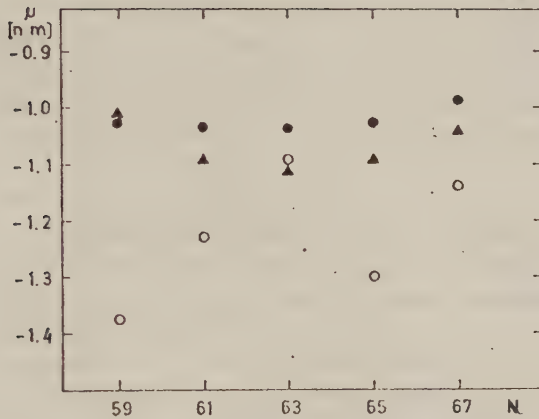


Fig. 3.10. Experimentelle Werte (▲) und berechnete Werte der $11/2^-$ Zustände in ^{107}Cd - ^{115}Cd . Die Rechnungen wurden nach dem Konfigurationsmischungsmodell (NAH 58) sowie nach Riegel et al. (RiB 73) (●) durchgeführt.

Tabelle 3.5. Besetzungszahlen der $11/2^-$ Zustände in Cd-Isotopen zu den Rechnungen von (NAH 58) und experimentell abgeleitete Besetzungszahlen für die Rechnungen von (RiB 73) in Klammern.

Kern	Besetzungszahlen der Neutronenschalen				Magn. Moment (n.m.)
	$1g_{7/2}$	$2d_{5/2}$	$2d_{3/2}$	$1h_{11/2}$	
^{107}Cd	6(4,1)	2(3,5)	0(0)	1(1,5)	-1.04(1)
^{109}Cd	6(4,6)	4(3,8)	0(0,3)	1(2,3)	-1.096(2) ^{a)}
^{111}Cd	6(5,2)	6(3,9)	0(0,7)	1(3,1)	-1.1051(4) ^{b)}
^{113}Cd	8(5,9)	6(4,0)	0(0,8)	1(3,9)	-1.087784(2) ^{c)}
^{115}Cd	8(6,8)	6(4,5)	2(1,1)	1(5,0)	-1.041034(2) ^{c)}

a) (B1F 72), b) (LaM 69), c) (HaM 69)

Auch die Quadrupolmomente der $11/2^-$ Zustände sind für ^{111}Cd - ^{115}Cd gemessen. Da in dieser Arbeit das Produkt aus Feldgradient und Quadrupolmoment gemessen wurde, läßt sich eine Aussage über das Quadrupolmoment nicht ableiten. Nimmt man jedoch die gemessenen Werte der Quadrupolmomente der $11/2^-$ Zustände von ^{111}Cd , $Q = -0.54(9)$ b (LaM 69); ^{113}Cd , $Q = -0.71(7)$ b (LaM 69); ^{115}Cd , $Q = -0.54(5)$ b (GeM 73) und extrapoliert auf das für den $11/2^-$ Zustand in ^{107}Cd zu erwartende Moment ($Q = -1.05(15)$ b), so kann der Feldgradient für Cd in Cadmium bestimmt werden zu: $eq(\text{CdCd}) = 7(1) \cdot 10^{17} \text{ V/cm}^2$. Dieser Wert liegt in dem Bereich, in dem auch andere Feldgradienten von hexagonal-dicht gepackten Metallen liegen ($eq(\text{ZnZn}) = 1 \cdot 10^{18} \text{ V/cm}^2$ (BeR 74)). Dieses Ergebnis wird im folgenden Abschnitt zur Bestimmung des Quadrupolmomentes des $5/2^+$ Zustandes in ^{111}Cd herangezogen werden.

3.3. Magnetisches Dipolmoment und elektrisches Quadrupolmoment des $5/2^+$ Zustandes in ^{111}Cd

Der $5/2^+$ Zustand in ^{111}Cd ($E = 247 \text{ keV}$, $\tau = 123 \text{ ns}$) ist einer der ersten mit der Methode der gestörten Winkelkorrelation untersuchten Zustände. Wegen der großen Anisotropie sind schon mehrere festkörperphysikalische Messungen zur magnetischen und elektrischen Wechselwirkung mit diesem Zustand durchgeführt worden.

Zur Bestimmung der Knight Shift von Cd in Palladium wurde der g-Faktor dieses Zustandes mit der in 2.2. beschriebenen 4-Detektorapparatur nach der DPAC-Methode nachgemessen. Als Quelle diente dabei eine wäßrige ^{111}In -Chloridlösung.

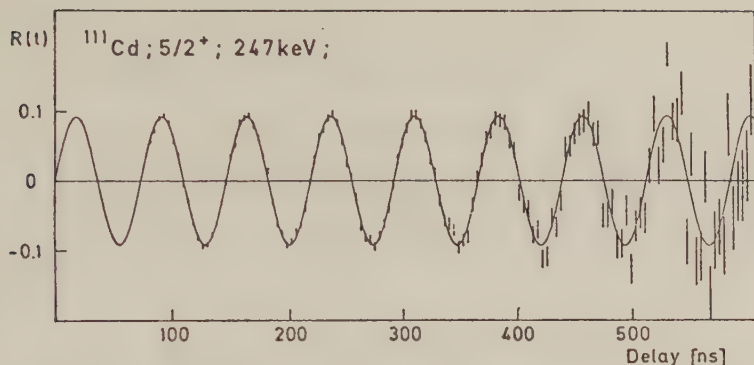


Fig. 3.11. Modulationsspektrum der 247 keV γ -Strahlung in ^{111}Cd

Die Abbildung 3.11. zeigt eines der vier gemessenen Modulationsspektren. Als gemittelter Wert der vier Messungen ergibt sich für den g-Faktor des 247 keV Zustandes

$$g(^{111}\text{Cd}, 5/2^+) = -0.306(1)$$

was einem magnetischen Moment von

$$\mu(^{111}\text{Cd}, 5/2^+) = -0.765(3) \text{ n.m.}$$

entspricht. Bei diesen Werten wurde eine diamagnetische Korrektur von 0.5 % berücksichtigt (Kop 58). Eine Korrektur des Ergebnisses aufgrund der chemischen Abschirmung ist, wie NMR-Messungen der Konzentrationsabhängigkeit der ^{111}Cd -Resonanz in wäßriger Lösung verschiedener Cd-Salze gezeigt haben, überflüssig (Krl 74). Die bisher veröffentlichten Werte des g-Faktors des $5/2^+$ Zustandes in ^{111}Cd sind in Abb. 3.12. zusammengefaßt.

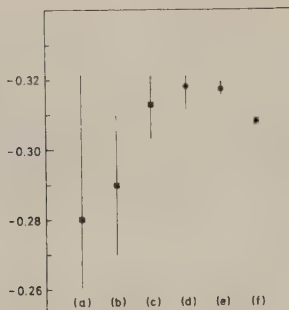


Fig. 3.12. Zusammenstellung der gemessenen g-Faktoren des $5/2^+$ Zustandes in ^{111}Cd . Die Messungen (a)-(c) sind mit der Methode der integralen Winkelkorrelation, die Messungen (d)-(f) mit der DPAC-Methode durchgeführt. (a)/ (AeA 54); (b): (AsH 54); (c): (StZ 56); (d): (MaB 63); (e): (BoH 53); (f): diese Arbeit

Das Quadrupolmoment dieses Zustandes ist ebenfalls in zahlreichen Arbeiten untersucht worden. Die Messung der Quadrupolwechselwirkung des $11/2^-$ Zustandes in ^{107}Cd in Cadmium und die Ableitung des Quadrupolmomentes dieses Zustandes aus analogen Zuständen benachbarter Kerne in dem vorhergehenden Abschnitt erlauben eine realistische Abschätzung des Quadrupolmomentes des $5/2^+$ Zustandes in ^{111}Cd . Mit den abgeleiteten Feldgradienten: $eq(\text{CdCd}) = 7(1) \cdot 10^{17} \text{ V/cm}^2$ und der von Bleck et al. (BlB 72) gemessenen Quadrupolkopplungskonstante für ^{111}Cd in Cadmium, $eqQh^{-1}(300 \text{ K}) = 123(1) \text{ MHz}$ ergibt sich für das Quadrupolmoment:

$$Q(^{111}\text{Cd}, 5/2^+) = 0.8(2) \text{ b.}$$

Dieser Wert ist in Übereinstimmung mit dem von Raghavan et al. (RaR 73) abgeschätzten Wert.

4. Festkörperphysikalische Resultate

Im folgenden Abschnitt werden die Messungen zur Knight Shift und ihrer Temperaturabhängigkeit an den Systemen AgPd und CdPd geschildert. Diese Messungen setzen die Kenntnis der im vorhergehenden Teil beschriebenen kernphysikalischen Größen voraus.

4.1 Knight Shift (KS)

W.D. Knight beobachtete als erster 1949 eine auffallend große Verschiebung der magnetischen Kernresonanzfrequenz in einem Metall gegenüber der Resonanzlinie des gleichen Isotops in einer diamagnetischen Salzlösung. Diese nach ihrem Entdecker benannte Knight Shift

$$KS = \frac{\omega_M - \omega_R}{\omega_R}$$

beträgt in vielen Fällen einige Promille und ist deshalb nicht durch die unterschiedlichen Suszeptibilitäten des Metalls und des Salzes zu erklären. Erst die Hyperfeinwechselwirkung zwischen den Elektronen des Metalls und dem Atomkern führt zu einer Verschiebung der Resonanzlinie in dieser Größenordnung.

Die Polarisation der Leitungselektronen eines Metalls ist proportional zur angelegten Magnetfeldstärke. Eine relative Verschiebung wie die KS ist daher unabhängig von der angelegten Feldstärke.

Im allgemeinen tragen folgende vier Beiträge zur KS additiv bei:

- (1) Der durch die Kontaktwechselwirkung der s-Elektronen mit dem Kern bewirkte Beitrag, K_s
- (2) Der durch die Core-Polarisation der polarisierten d-Elektronen bewirkte Beitrag, K_d
- (3) Der orbitale Beitrag, K_o
- (4) Der durch die diamagnetische Abschirmung der Kerne hervorgerufene Anteil K_{dia}

Im folgenden werden die einzelnen Beiträge näher erläutert. Die klassische Theorie der KS von Townes, Harrington und Knight (THK 50) beschreibt die KS für Metalle kubischer Symmetrie, bei denen die Kontaktwechselwirkung der s-Elektronen mit dem Kern den Hauptbeitrag liefert. Diese führt zu einer Verstärkung des angelegten Feldes am Kernort und daher zu einer positiven KS. Die KS läßt sich schreiben als:

$$(4.1) \quad K_s = \frac{8\pi}{3} \chi_s \Omega \langle |\psi_F(0)|^2 \rangle$$

χ_s : Pauli-suszeptibilität der s-Elektronen

Ω : Atomvolumen

$|\psi_F(0)|^2$: Aufenthaltswahrscheinlichkeit von s-Elektronen der Fermifläche am Kernort

Eine unabhängige Bestimmung dieser Größen und damit eine Überprüfung ist im allgemeinen nicht möglich, da die Größe $\langle |\psi_F(0)|^2 \rangle$ nicht bestimmt werden kann. Mit der Näherung

$$\langle |\psi_F(0)|^2 \rangle = \xi \langle |\psi_{Atom}(0)|^2 \rangle \quad \text{für } \xi = 1$$

erhält man mit der Hyperfeinkopplungskonstanten $a(s)$ der s-Elektronen.

$$a(s) = \frac{16\pi}{3} \frac{\mu_K}{I} \mu_B |\psi_A(0)|^2$$

g_I : g-Faktor des Kernes

μ_K : Kernmagneton

μ_B : Bohrsches Magneton

woraus sich für die Knight Shift ergibt:

$$(4.2) \quad K_S = \frac{\Omega}{2g_I \mu_B} \cdot a(s) \cdot \xi \cdot \chi_S$$

Anhand dieser Formel wird die KS in Metallen kubischer Symmetrie ausführlich von Knight (Kni 56) diskutiert.

Für den Anteil K_S ergeben sich folgende Eigenschaften:

- (1) K_S ist positiv, d.h. es wird eine Frequenzverschiebung zu größeren Frequenzen beobachtet.
- (2) K_S nimmt mit wachsender Masse des Atomes zu
- (3) K_S ist unabhängig von der Temperatur.

Beispielhaft für die KS in einfachen Metallen ist die Reihe der Edelmetalle, die mit wachsender Ordnungszahl ein Ansteigen der KS zeigen: $KS(\text{CuCu}) = +0.237(1) \%$ (GuG 72), $KS(\text{AgAg}) = +0.524(2) \%$ (Dra 59), $KS(\text{AuAu}) = +1.4 \%$ (Nar 67). Die Temperaturabhängigkeit der KS dieser Metalle wurde bisher nur für Cu im Temperaturbereich von 250-1450 K gemessen und dabei eine geringe Zunahme der Shift von 0.015 % beobachtet (WaC 70). Diese Zunahme der KS wird zurückgeführt auf die Änderung der Größen Ω und $\langle |\psi_F(0)|^2 \rangle$ durch thermische Ausdehnung und thermische Bewegung. Für die $KS(\text{AgAg})$ wird eine ähnlich geringe Temperaturabhängigkeit erwartet.

Für die Übergangsmetalle mit nur teilweise gefüllten d-Bändern wird der durch die Core-Polarisation bewirkte Beitrag, K_d ,

bestimmend. Die Austauschwechselwirkung zwischen den durch das angelegte Feld polarisierten d-Elektronen und den s-Elektronen führt zu einer Polarisation der inneren s-Schalen, wodurch die Spindichte am Kernort geändert wird. Für die Übergangsmetalle liefert diese Hyperfeinwechselwirkung einen negativen Beitrag zur KS. Für die Metalle Palladium und Platin ist er Ursache für die negative KS: $KS(Pd) = -3.0(4) \%$ (SGJ 64), $KS(Pt) = -3.533(3) \%$ (Dra 63). In diesen Metallen wird die magnetische Suszeptibilität hauptsächlich durch die d-Elektronenlücken in der 4d- bzw. 5d-Schale bestimmt und ist stark temperaturabhängig. Die Temperaturabhängigkeit der KS und der magnetischen Suszeptibilität wurde untersucht und ein gleicher Temperaturgang beider Größen beobachtet (CLY 64, SGJ 64).

Der orbitale Beitrag, K_o , ist für einige Übergangsmetalle, wie Vanadium ($K = +0.580(1) \%$ (Dra 64)) und Legierungen des Vanadiums (z.B. V_3Ga , V_3Si) ein beträchtlicher Beitrag zur KS. K_o ist hier ein positiver Beitrag zur KS und weitgehend von der Temperatur unabhängig. Für Vanadium beträgt die Temperaturänderung der KS im Bereich von 20-300 K 2% der gemessenen KS (Hec 76). Im allgemeinen kann K_o positive als auch negative Werte annehmen.

Der diamagnetische Beitrag, K_{dia} , ist durch die diamagnetische Abschirmung der Atomkerne durch die Elektronenhüllen bedingt. Er führt zu einer negativen Verschiebung. Im Falle der Knight Shift des Übergangsmetalls Palladium ist dieser Beitrag jedoch zu vernachlässigen.

Die vier Beiträge zur KS lassen sich also schreiben:

$$(4.3) \quad KS(T) = K_s + K_d(T) + K_o + K_{dia}$$

oder mit den entsprechenden Suszeptibilitäten

$$(4.4) \quad KS(T) = \alpha_s \chi_s^p + \alpha_d \chi_d^p(T) + \beta \chi_o + \gamma \chi_{dia}$$

Für die Diskussion der KS bei Legierungen des Palladiums wurde im Sinne eines Bändermodells der Auffüllungsgrad des d-Bandes durch die mit dem Legierungspartner eingebrachten Elektronen eingeführt mit

$$(4.5) \quad n_e = \frac{z_i N_i + z_j N_j}{N_i + N_j} \quad (\text{Bor 67})$$

Hierbei bedeutet $N_{i,j}$ die Anzahl der Atome der Komponente i,j in der Legierung und $z_{i,j}$ ihre Wertigkeit. Die Beiträge K_{cp} , K_o hängen von dem Besetzungsgrad ab, so daß gilt:

$$(4.6) \quad KS(T, n_e) = K_s + K_d(T, n_e) + K_o(n_e) + K_{dia}$$

In einem KS- χ -Diagramm ergibt sich dann mit der Temperatur oder dem Auffüllungsgrad n_e als implizitem Parameter eine Gerade, deren Steigung der Faktor $\mathcal{L}_d$ ist.

Die magnetischen Eigenschaften der Pd-Legierungen werden üblicherweise im Rahmen von Bändermodellen diskutiert. Nach diesen Modellen wird ein den Legierungspartnern gemeinsames d-Band angenommen mit hoher Zustandsdichte an der Fermikante. Das s-Band zeigt keine große Zustandsdichte an der Fermikante und wird als sehr breit angenommen. Die Änderung der magnetischen Suszeptibilität der Legierungen (Abnahme des Paramagnetismus mit sinkender Palladiumkonzentration oder die Änderung der Isomerieverschiebung wird durch das Auffüllen des teilweise besetzten d-Bandes durch Elektronen des s-Bandes erklärt. Viele Legierungen zeigen bei einer Elektronenkonzentration $n_e \sim 0.5-0.6$, daß bei Annahme des Bändermo-

dells das d-Band gefüllt sein sollte. Dies führt wiederum zu dem Schluß, daß das reine Palladium 0.5-0.6 Löcher im d-Band haben sollte.

Die Messungen des de-Haas van-Alphen Effektes an einkristallinem Palladium von Vuillemin und Priestley (VuP 65, Vui 65) zeigen jedoch, daß das s-Band nur mit 0.36 Elektronen besetzt ist. Das d-Band kann daher nicht mehr als 0.36 Löcher haben (Konfiguration des Palladium: Krypton +4d¹⁰).

Zur Erklärung dieses Unterschiedes haben Montgomery et al. (MoP 67) angenommen, daß sich die Lage des 4d-Bandes zum 5s-Band verschiebt. Auch eine Verbreiterung des d-Bandes zu höheren Energien bei Einführung von Legierungspartnern und eine damit verbundene Abnahme der hohen Zustandsdichte an der Fermikante gegenüber dem reinen Metall würden die aufgezeigte Diskrepanz erklären helfen. Eine Verbreiterung des d-Bandes wurde von Hoare und Yates (HoY 57) zur Erklärung der spezifischen Wärme der AgPd-Legierungen herangezogen. Auch die Ergebnisse der Arbeiten mit der Isochromatenmethode der Röntgenspektroskopie (EgU 68) sowie die Messungen der magnetischen Suszeptibilität von Rh-Pd-Ag Legierungen von Hahn und Treutmann (HaT 65) lassen sich mit der Annahme einer Verbreiterung des 4d-Bandes erklären.

Bei der Annahme eines Bändermodells ist allerdings zu erwarten, daß die Messungen an Legierungen mit Mischungspartnern die Oktaederlücken besetzen (Wasserstoff, Bor) oder die substitutionell Pd-Plätze im kubisch-flächenzentrierten Palladiumgitter einnehmen und unterschiedliche Wertigkeiten aufweisen, verschiedene Werte für die Größe n_e ergeben. Tatsächlich liegen aber alle Werte zwischen 0.5 und 0.6.

Lang und Ehrenreich (LaE 68) schlagen ein Modell vor, welches die Annahme gemeinsamer Bänder der Legierungspartner aufhebt und für Legierungen die gleichen Elektronenkonfigurationen wie für die reinen Metalle annimmt. Mit diesem Modell können Messungen der Photoemission zur Untersuchung der Bandstruktur gut erklärt werden (HäW 72, NoM 71). Ein ähnliches Modell wird von Soven als "minimum polarity model" vorgeschlagen (Sov 67). Die Rechnungen bestätigen die experimentellen Ergebnisse zu den magnetischen Eigenschaften der NiCu- und AgPd-Legierungen (KiV 70, StW 71, StW 73).

Die Ergebnisse der Messungen der magnetischen Suszeptibilität an Legierungssystemen des Palladiums (Wue 52, Ger 58) legen nahe, daß beim Einbau von Verunreinigungsatomen die magnetische Suszeptibilität der benachbarten Palladiumatome abnimmt. Dabei hängt die Abnahme der Suszeptibilität stark von der Valenz des eingebauten Atomes ab und damit von der oben definierten Elektronenkonzentration.

Beim Einführen der Legierungspartner werden nach einer theoretischen Betrachtung von Kanamori und Terakura (TeK 71) die Amplituden der Wellenfunktionen an den Palladiumatomen abnehmen, um am Verunreinigungsatom Ladungsneutralität herzustellen. Das führt zu einem Elektronendefizit an den Palladiumatomen. Die Valenzzahl des Verunreinigungsatoms bestimmt dabei das Elektronendefizit der benachbarten Palladiumatome. Fig. 4.1. veranschaulicht diese Situation.

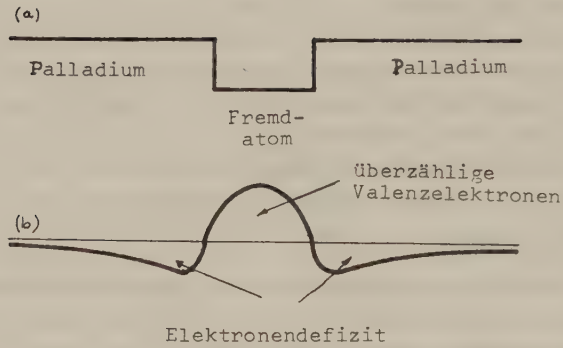


Fig. 4.1. (a) Die Tiefe des Potentials am Verunreinigungsatom hängt von seiner Valenz ab
(b) Verteilung der Elektronen um das Verunreinigungsatom.

Das Elektronendefizit an den Palladiumatomen, die das Verunreinigungsatom umgeben, wird durch Elektronen des d-Bandes aufgefüllt. So werden die unbesetzten Zustände der Palladiumatome besetzt, und die lokale Zustandsdichte an der Fermikante dieser Palladiumatome ist geringer als im ungestörten Gitter. Die magnetische Suszeptibilität nimmt ab und damit auch die KS gemessen am Verunreinigungsatom.

4.2 Vorliegende Messungen zur Knight Shift an verschiedenen Sonden im Palladium

Im folgenden Abschnitt sind vorliegende Messungen zur KS an verschiedenen Sondenkernen in Palladium und Palladiumlegierungen zusammengestellt.

(1) Das System Palladium-Wasserstoff

Die KS von ^{107}Pd und ^1H im System Pd-H sind in vielen Arbeiten untersucht worden. Für die Protonenresonanz wurde bei den Konzentrationen $\text{PdH}_{0.014}$ und $\text{PdH}_{0.035}$ eine $\text{KS}(\text{HPd}) = -0.93(8)\%$, bzw. $-0.50(5)\%$ bei 4 K gemessen (BrV 73). Die KS von ^{107}Pd beträgt in diesem System: $\text{KS}(\text{PdPdH}_{0.025}) = -1.49(15)\%$ bei 75 K. Der Temperaturgang der $\text{KS}(\text{HPd})$ läßt sich entsprechend der Formel (4.6) bei fester H-Konzentration durch eine Gerade darstellen. Die Ergebnisse werden im Rahmen der oben erwähnten Bändermodelle diskutiert.

(2) Aluminium in Palladium

Die Spin-Gitter-Relaxationszeit T_1 und die KS von Aluminium in Palladium und die Konzentrationsabhängigkeit dieser Größen wurden von Kuhuzuki und Asayama gemessen (KoA 72). Abb. 4.1. zeigt die Resultate dieser Messungen bei Temperaturen von 1.2-4.2 K. Der aus der Spin-Gitter-Relaxationszeit mit Hilfe der Korringa-Relation abgeleitete Wert der $\text{KS}_K = +0.04\%$ stimmt nicht mit dem gemessenen Wert $\text{KS}(\text{AlPd}) = -0.002(5)\%$ überein. Der Unterschied zwischen gemessenem und berechnetem Wert der KS wird auf die Spin-Polarisation der s-Elektronen des Al-Atoms durch die polarisierten Spins der d-Elektronen des Palladiums erklärt.

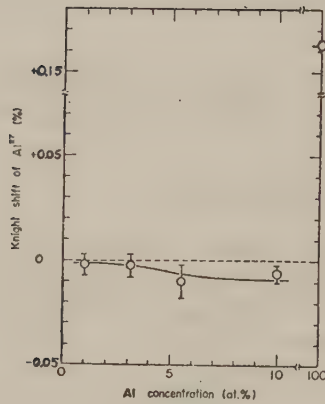


Abb. 4.2 Konzentrationsabhängigkeit der KS von ^{27}Al in Pd-Al-Legierungen (KoA 72).

(3) Scandium in Palladium

KS und Spin-Gitter-Relaxation von ^{45}Sc in Palladium wurden bei $T \approx 1.2 - 4.2$ K für die Systeme $Pd_{1-x}Sc_x$ ($x = 0.03; 0.01$) von Terakura et al. (TeY 74) gemessen mit $KS(Sc_{x \rightarrow Pd_{1-x}})$, $x = 0.03, 0.01 = -0.12(2) \%, -0.18(4) \%$. Diese Werte für Sc zeigen bei wachsender Konzentration des Legierungspartners eine Abnahme der negativen KS entsprechend dem oben diskutierten Konzentrationseffekt. Al und Sc haben zu Pd die gleiche Valenz 3. Die KS beider Sondenkerne in Palladium ist entsprechend dem erwähnten Valenzeffekt vergleichbar.

(4) Vanadium in Palladium

Die KS von ^{51}V in Palladium und ihre Temperaturabhängigkeit wurden von Jaccarino gemessen, $\text{KS}(^{51}\text{VPd}) = +0.75(2) \%$ (Jac 64). Dieser Wert ist größer als der des reinen Metalles $\text{KS}(\text{VV}) = +0.580(1) \%$ (Dra 64). Die KS an dem System VPd ist von Kohzuki et al. gemessen (KoA 72). Die Ergebnisse sind in Fig. 4.3 gezeigt.

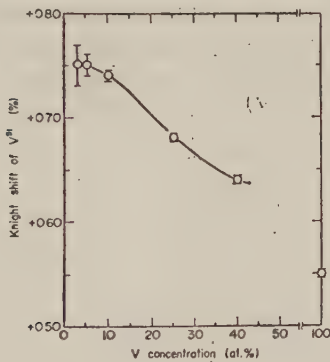


Abb. 4.3 Konzentrationsabhängigkeit der KS von ^{51}V in Pd-V-Legierungen (nach KoA 72).

Die $\text{KS}(\text{VPd})$ wird erklärt durch die verschiedenen Beiträge entsprechend der Formel (4.6). Die Beiträge K_s und K_o sind positiv, K_d negativ. Die Ergebnisse, der Wert T_1T kann allein aus dem Beitrag der s- Elektronen erklärt werden und die KS ist im Rahmen der Meßgenauigkeit temperaturunabhängig, zeigen den geringen Einfluß von K_d für den Bereich geringster Konzentrationen und erklären die große positive KS.

(5) Kupfer in Palladium

Die magnetische Suszeptibilität und die KS von Cu in Palladium sind bei tiefen Temperaturen ($T = 1.5-4.2$ K) von Kobayashi et al. untersucht worden (KoA 63). Der Wert der $KS(\text{CuPd}) = -0.9\%$ ist für eine sehr verdünnte (1 at%) CuPd-Legierung gemessen worden. KS und Suszeptibilität zeigen für Cu-Konzentrationen > 0.3 at% linearen Zusammenhang. Bei den sehr verdünnten Legierungen bleibt bei steigender Suszeptibilität die KS konstant. Dieses deutet auf einen sehr geringen Radius der Störung des d-Bandes um das Verunreinigungsatom hin. Da unterhalb der Cu-Konzentration die einzelnen Störungen der verschiedenen Störatome nicht mehr überlagern, bleibt die KS konstant. In Abb. 4.4 sind die Ergebnisse der Messungen von Kobayashi et al. (KoA 63) dargestellt.

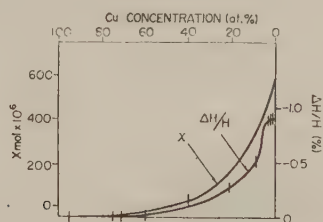


Fig. 4.4 Konzentrationsabhängigkeit der KS und der magnetischen Suszeptibilität an CuPd-Legierungen (aus KoA 63).

Der Beitrag der d-Elektronen Spinsuszeptibilität auf die Gesamtsuszeptibilität ist bei diesem System groß und deshalb ist ebenfalls der Beitrag K_d zur KS groß. Für eine Valenzdifferenz $\Delta V = 1$ ist dieses zu erwarten, da die Störung der magnetischen Eigenschaften des Pd-Gitters gering sein sollte.

(6) Rhodium in Palladium

Die KS(RhPd) ist in zwei Arbeiten untersucht. Rao et al. (RaM 69) haben mit der DPAC-Methode die KS($^{100}\text{RhPd}$) und ihre Temperaturabhängigkeit gemessen. Fig. 4.5 zeigt die Ergebnisse dieser Messungen. Die KS(RhPd) ist negativ (bis -15%) und stark temperaturabhängig. Aus dem einen Curie-Weiss Gesetz entsprechenden Temperaturverhalten der KS und dem unterschiedlichen Temperaturgang von Suszeptibilität und KS wird auf die Existenz lokaler magnetischer Momente an den Rh-Atomen geschlossen.

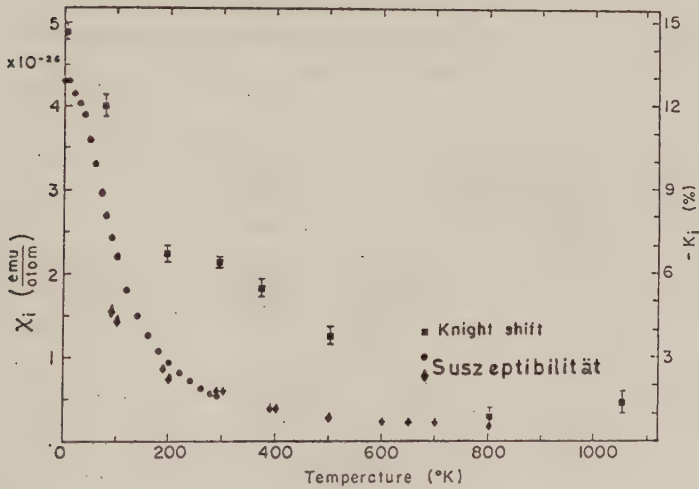


Fig. 4.5 KS(RhPd) und Suszeptibilität an den Rh-Atomen (aus RaM 69).

Narath und Weaver (NaW 71) haben mit der Kernresonanz am ^{103}Rh die KS(RhPd) und Spin-Gitter Relaxationszeiten gemessen. Bei Legierungen ist die KS($\text{Rh}_x\text{Pd}_{1-x}$) für Konzentrationen bis

$x=5$ konstant ($KS(RhPd) = -14.7 \%$). Ein Vergleich dieser KS mit der $KS(PdPd)$ zeigt, daß die lokale Suszeptibilität an den Rh-Atomen ca. dreimal größer ist als die des Gastgitters Pd. Die $KS(RhPd)$ und die Spin-Gitter-Relaxationszeit werden hauptsächlich durch einen Core-Polarisation-Beitrag der d-Spins bestimmt, der durch die Austauschwechselwirkung verstärkt ist. Die $KS(RhPd)$ läßt sich deshalb nicht im Rahmen der oben erwähnten Bändermodelle erklären.

(7) Palladium in Palladium

Seitchick et al. (SeG 64) haben die $KS(PdPd)$ bei 80 K bestimmt zu: $KS(PdPd) = -4.5 \%$. Die KS und die magnetische Suszeptibilität haben den gleichen Temperaturgang.

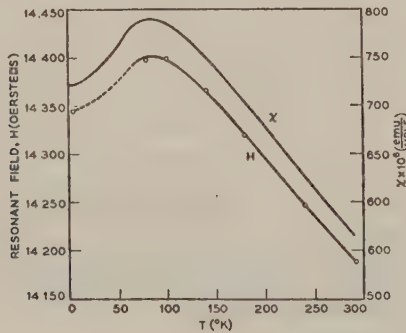


Fig. 4.6 $KS(PdPd)$ und magnetische Suszeptibilität des Palladium-Metalls (aus SeG 64).

Die KS in diesem Metall wird diskutiert mit Hilfe der Formeln 4.4 und 4.6. Der Anteil, der von der Kontaktwechselwirkung herrührt, K_s , wird mit $K_s = +0.36 \%$ abgeschätzt. Der durch die Core-Polarisation hervorgerufene Beitrag, K_d , ist als einziger temperaturabhängig und wird aus der Steigung der Geraden in einer KS über χ - Darstellung mit der Temperatur als implizitem Parameter gewonnen. Es ergibt sich: $\mathcal{L}_d = -0.616 \cdot 10^2$, woraus ein Hyperfeinfeld der 4d-Elektronen durch die Core-Polarisation mit $H_{4d} = -0.689 \cdot 10^6$ Oe abgeleitet werden kann. Der Beitrag, der durch den orbitalen Paramagnetismus entsteht, ergibt sich zu $K_o = +0.36 \%$.

(8) Silber in Palladium

Neben den noch zu beschreibenden Messungen dieser Arbeit liegen zum System AgPd zwei weitere Messungen der KS(AgPd) vor (Nar 68, BrV 75). In diesen Arbeiten wird die KS in Abhängigkeit von der Ag-Konzentration mit Hilfe der magnetischen Kernresonanz am ^{109}Ag gemessen. Meßreihen sind bei 4.2 K und 298 K durchgeführt. Die Ergebnisse beider Arbeiten sind in Fig. 4.7 zusammengefaßt.

Die Werte der KS(AgPd) für die verdünnten Systeme betragen bei 4 K: $KS(AgPd) = -1.41(5) \%$ (Nar 68), bei 298 K: $KS(AgPd) = -0.80(5) \%$ (BrV 75) bei Konzentrationen von 2.5 at%, bzw. 5 at% Ag.

Die Ergebnisse der Messungen werden von Brill und Voitländer (BrV 75) im Rahmen verschiedener Bändermodelle diskutiert, die einen Ladungstransport zwischen s- und d-Band nicht aus-

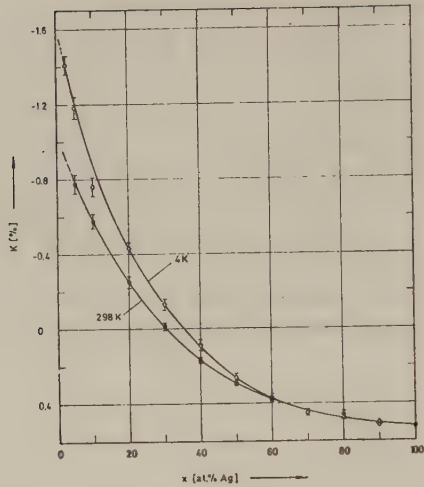


Fig. 4.7 Die $KS(\text{AgPd})$ in Abhängigkeit von der Ag-Konzentration. Die Messungen bei 4 K sind aus der Arbeit von (Nar 68, Sno 71), die bei 298 K von (BrV 75).

schließen. Der Widerspruch zu den Messungen der elektrischen Struktur des reinen Metalls bleibt weiterhin bestehen.

Aus der Relaxationszeit T_1 des ^{109}Ag bei einer Legierung $\text{Pd}_{1-x}\text{Ag}_x$, $x = 0.025$ extrapoliert Narath (Nar 68) neben dem oben genannten Wert für die $KS(\text{AgPd})$ aus dem Wert T_1T den Beitrag der Kontaktwechselwirkung $K_s = +0.34\%$. Der Beitrag K_d ergibt sich daher zu $K_d = KS - K_s = -1.80\%$. Hieraus läßt sich ein Hyperfeinfeld aufgrund der Spin-Polarisation der d-Leitungselektronen zu $H_d = -140(10) \text{ kOe}/\mu_B$ berechnen.

(9) Cadmium in Palladium

Die Messung der $KS(CdPd)$ ist ein Ergebnis dieser Arbeit und wird in Abschnitt 4.3 beschrieben.

Die magnetische Suszeptibilität wurde an $CdPd$ -Legierungen von Lam und Myles untersucht (LaM 66). Die Ergebnisse zeigen, daß die magnetische Suszeptibilität der Legierungen mit wachsender Cd -Konzentration abnimmt. Die Ergebnisse werden durch das Bändermodell sehr gut erklärt.

(10) Indium in Palladium

Für dieses System liegt nur ein experimentelles Ergebnis der ^{115}In -Kernresonanz in $B2 Pd_{50}In_{50}$ vor. Bei dieser Legierung ist die $KS(In) = +0.45(5) \%$. Der Temperaturgang zwischen 4 K und 300 K beträgt 0.05 %.

(11) Zinn in Palladium

Die magnetische Suszeptibilität und die Isomerieverschiebung des ^{119}Sn wurden von Hayes und Harris für mehrere $SnPd$ -Legierungen gemessen (HaH 67). Beide Meßgrößen zeigen an, daß die s -Elektronen des ^{119}Sn bis zu den Legierungen von $\sim 20 \%$ Sn an das Palladium abgegeben werden. Erst oberhalb dieser Konzentration ändert sich die Isomerieverschiebung am ^{119}Sn . Da eine Valenz $\Delta V = 3$ für Sn gilt, sollte das Sn dreimal so "effektiv" das leere d -Band des Palladiums füllen. Das Meßergebnis bestätigt diese Annahme des Bändermodells.

.

Die $KS(\text{SnPd})$ wurde bei einer Konzentration von 3% Sn zu $KS(\text{SnPd}) = +0.93(5) \%$ gemessen. Dieser Wert stimmt nicht mit einem aus der Spin-Gitter-Relaxationszeit bestimmten Wert $K_K = +0.28$ überein, läßt sich also nicht allein aus der durch die Kontaktwechselwirkung der s-Elektronen bewirkten KS erklären.

Zusammenfassung:

Die in diesem Abschnitt geschilderten Werte zur KS von Verunreinigungsatomen in Palladium sind in der Abbildung 4.8 zusammengefaßt. Dabei sind die Elemente verschiedener Perioden aber gleicher Gruppe als ΔV relativ zum Palladium eingetragen. Im Bild zeigt sich ein "Valenzeffekt": Je größer ΔV desto positiver wird die KS des Verunreinigungsatoms in Pd. Weiterhin zeigt sich ein "Einfluß der Periode": Mit wachsender Periode bei gleicher Valenz wird die KS dem Betrage nach größer. Dieser Effekt wird bei Cu und Ag besonders deutlich. Für eine positive KS in Palladium liegt noch keine Messung an isoelektrischen Verunreinigungsatomen vor. Man kann - in Analogie zu den magnetischen Hyperfeinfeldern in Nickel - eine solche Zunahme erwarten.

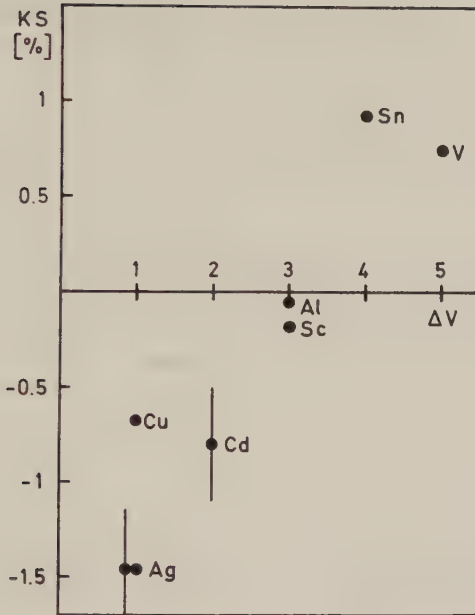


Fig. 4.8 Zusammenstellung der vorliegenden Werte der KS, gemessen an Verunreinigungsatomen in metallischem Palladium

4.3 Messungen der Knight Shift und ihrer Temperaturabhängigkeit von Silber und Cadmium in Palladium

4.3.1 Auswahl der isomeren Kernzustände

Die im Teil 3 dieser Arbeit gemessenen isomeren Zustände sollen zur Messung der KS von Ag und Cd in Palladium herangezogen werden.

Für die Messung an dem System AgPd wird dabei der 3^+ -Zustand im ^{108}Ag bevorzugt, da er bei gleichem g-Faktor und nahezu gleicher Anisotropie eine längere Lebensdauer als der 3^+ -Zustand im ^{110}Ag besitzt. Das Quadrupolmoment dieses Zustandes wurde als sehr klein abgeschätzt. Eine Störung der magnetischen Wechselwirkung durch eine Quadrupolwechselwirkung ist deshalb nicht zu erwarten.

Zur Messung der KS mit Hilfe dieses Zustandes bietet sich eine relative Messung an den Systemen AgAg und AgPd an, da der Zustand bei den zur Verfügung stehenden Einschußenergien über die Kernreaktionen $^{108}\text{Pd}(p,n)$ und $^{107}\text{Ag}(d,p)$ erzeugt werden kann.

Für die Messung der KS an dem System CdPd stehen drei isomere Kernzustände zur Verfügung, die über (L,n)-Reaktionen von verschiedenen Pd-Isotopen bevölkert werden:

$^{107}\text{Cd}(11/2^-, T_{1/2} = 73 \text{ ns}, g = -0.189(2))$ (diese Arbeit)

$^{109}\text{Cd}(11/2^-, T_{1/2} = 8.9 \mu\text{s}, g = -0.1992(5))$ (B1F 71)

$^{111}\text{Cd}(5/2^+, T_{1/2} = 84 \text{ ns}, g = -0.306(1))$ (diese Arbeit)

Der $11/2^-$ -Zustand im ^{107}Cd scheidet für die Messung der KS wegen des kleinen g-Faktors und der kurzen Lebensdauer aus.

Messungen des Temperaturganges der Anisotropie des $11/2^-$ -Zustandes in ^{109}Cd (B1F 71, Sem 72) in Silber haben für Temperaturen unterhalb 600 K eine starke Dämpfung der Anisotropie gezeigt, die auf die Quadrupolwechselwirkung des $11/2^-$ -Zustandes mit Fehlstellen im Kristallgitter zurückgeführt werden. Ähnliche Quadrupolstörungen sind auch für das System $^{109}\text{CdPd}$ zu erwarten. Da die Messung der KS aber gerade im tiefen Temperaturbereich interessant ist, wird der $5/2^+$ -Zustand im ^{111}Cd zur Messung der KS herangezogen. Das Quadrupolmoment dieses Zustandes ist groß (siehe Abschnitt 3.3). Bei diesen Messungen wird deshalb eine Quadrupolstörwechselwirkung auftreten.

4.3.2 Einfluß der DPAD-Methode auf die Messung magnetischer Eigenschaften in Metallen

Bei der DPAD-Methode werden die beobachteten Kernzustände durch Kernreaktionen erzeugt. Die Folgen der Bestrahlung auf die Messung der magnetischen Eigenschaften des Festkörpers sollen im folgenden kurz diskutiert werden.

Bei der Kernreaktion wird auf den Sondenkern eine Rückstoßenergie von einigen hundert keV übertragen. Die Kerne werden deshalb einige hundert Atomlagen durch das Kristallgitter geschleudert und geben ihre Energie durch inelastische und elastische Stöße (electronic-, nuclear-stopping power) an das Gitter ab. Die Folge ist eine große Anzahl von Verlagerungskaskaden, die Leerstellen und Zwischengitteratome erzeugen. Die Entstehung und das Rekombinationsverhalten sind mehrfach ausführlich diskutiert (GiG 60, Bee 66). Diese Betrachtungen lassen den Schluß zu, daß die Mehrzahl der Sondenkerne nach einem Ersetzungsstoß auf einem substitutionellen Gitterplatz

zur Ruhe kommt. Voraussetzung dazu ist, daß sich die Valenz und der Ionenradius von Gitter und Sondenkern nur unwesentlich unterscheiden. In den betrachteten Systemen AgPd und CdPd wird der Sondenkern mit großer Wahrscheinlichkeit auf einem regulären Gitterplatz sitzen.

Die Umgebung des Sondenkerns ist zunächst sehr stark gestört. Die Rekombination von Zwischengitteratomen und Leerstellen läßt jedoch das Gitter in der Umgebung des Sondenkerns ausheilen. Die Ausheilprozesse sind dabei von der Temperatur abhängig. Besitzt der Sondenkern ein großes Quadrupolmoment, so kann der durch die unsymmetrische Ladungsverteilung und den Sondenkern bewirkte elektrische Feldgradient zu einer Quadrupolwechselwirkung führen. Dieser Effekt wird für das System $^{111}\text{CdPd}$ beobachtet, während die Messungen am $^{108}\text{AgPd}$ eine solche Störung nicht zeigen.

In den eben beschriebenen Quadrupolstörungen kann das metallische Target durch den primären Teilchenstrahl gestört werden. Auch die Primärteilchen erzeugen durch elastische Stöße mit den Atomen des Gitters Strahlenschäden, wobei die Verteilung wegen der größeren Reichweite gegenüber den Sondenkernen verschoben ist. Die Primärteilchen kommen bei den in dieser Arbeit betrachteten Systemen nach 30-50 μm zur Ruhe. Das heißt, daß nach einer längeren Bestrahlungszeit in dieser Targettiefe eine hohe Konzentration von H bzw. He aufgebaut wird. Wegen der großen Löslichkeit des Wasserstoffs und des großen Diffusionskoeffizienten ist es nicht auszuschließen, daß der Wasserstoff bei dem System $^{108}\text{AgPd}$ auch in den Bereich der Ag-Sondenkerne wandert. Wie bei dem System CdPd sollte dieser Prozeß aber erst bei höheren Temperaturen eine Rolle spielen. Die Übereinstimmung der KS-Messungen von AgPd mit den Methoden der DPAD und NMR zeigt an, daß der Einfluß

von Primärteilchen auf die Messung der KS mit der DPAD-Methode nicht beobachtet wurde. Diese Messung der KS stimmt damit mit einer Reihe von Messungen der magnetischen Hyperfeinfelder überein, bei denen kein Einfluß durch die Bestrahlung festgestellt wird und der Sondenkern einen substitutionellen Gitterplatz einnimmt.

4.3.3 Messungen am System AgPd

Die KS(AgPd) wurde durch eine relative Bestimmung der Larmorfrequenzen des ^{108}Ag in Silber und in Palladium gemessen. Da die KS(AgAg) = 0.524(2) % (Dra 59) bekannt ist, kann auch der Wert der KS(AgPd) angegeben werden.

Die Temperaturabhängigkeit KS(AgAg) ist bisher nicht gemessen. Sie kann jedoch im Rahmen der hier geschilderten Meßgenauigkeit (~ 0.3 %) als konstant angenommen werden. Die Eichmessung am System wurde daher nur bei einer Temperatur von 300 K durchgeführt.

Die erhaltenen Modulationsspektren gleichen den in Abb. 3.1. gezeigten Spektren. Die Anisotropie der Modulationsspektren hat für alle Temperaturen den gleichen Wert von 0.55(5) %. Ein Relaxationsverhalten der Modulationsamplitude wurde über den beobachteten Zeitraum nicht gefunden, d.h. $\tau_{\text{Rel}} > 1\mu\text{sec}$. Dieses Ergebnis zeigt, daß keine Quadrupolstörung bei den Messungen an dem System $^{108}\text{AgPd}$ auftritt. Bestätigt wurde dieses Ergebnis durch eine zeit-differentielle Messung der Anisotropie. Auch hier wird keine Abnahme oder Störung der Anisotropie beobachtet.

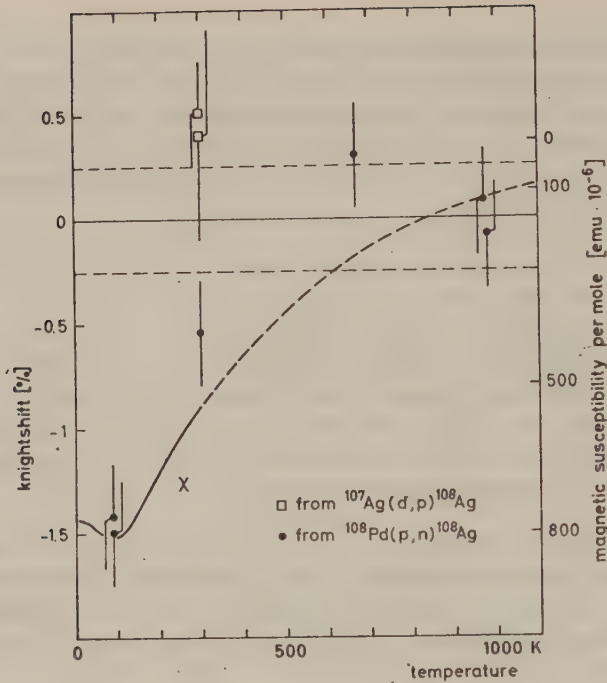


Abb. 4.9 Messung der Temperaturabhängigkeit der KS(AgPd)
Die ausgezogene Kurve zeigt die Messungen der magnetischen Suszeptibilität des reinen Palladiums von Hoare et al. (HoM 52).

Bild 4.9 zeigt die Ergebnisse der Messungen der KS(AgPd) und ihrer Temperaturabhängigkeit. Aufgrund der Ungenauigkeit des g-Faktors ist der Nullpunkt der KS um 0.25 % unsicher.

Die Messung der magnetischen Suszeptibilität des reinen Palladiummetalls und die Extrapolation der Suszeptibilität zu hohen Temperaturen sind ebenfalls eingetragen (HoM 52).

Die Werte für 80 K, $KS(\text{AgPd}) = -1.5(3) \%$, $-1.4(3) \%$ sind in guter Übereinstimmung mit den bei 4.2 K an der Legierung $\text{Pd}_{1-x}\text{Ag}_x$ ($x = 0.025$) mit der magnetischen Kernresonanz aufgenommenen Wert $KS(\text{AgPd}) = -1.42(2) \%$ (Nar 68). Dies ist zu erwarten, da die Suszeptibilität sich nicht mehr wesentlich in diesem Temperaturbereich ändert.

Der Wert bei 300 K, $KS(\text{AgPd}) = -0.55(3) \%$ stimmt mit dem von Brill und Voitländer für diese Temperatur gemessenen Wert von $KS(\text{AgPd}) = -0.77(5) \%$ innerhalb des Fehlers überein. Dieser Wert wurde in einer Legierung von $\text{Pd}_{1-x}\text{Ag}_x$ ($x = 0.05$) mit der ^{108}Ag -Kernresonanz gemessen (BiV 75),

4.3.4 Messung der Knight Shift von Cadmium in Palladium

Die $KS(\text{CdPd})$ wurde mit dem $5/2^+$ -Zustand in ^{111}Cd mit den Methoden DPAD und DPAC bestimmt.

Die DPAD-Methode bietet die Möglichkeit, mit Hilfe dieses Zustandes die Larmorfrequenzen in den Systemen $^{111}\text{CdPd}$ nach der Reaktion $^{108}\text{Pd}(\text{d},n)$ mit der von $^{111}\text{CdCd}$ nach der Reaktion $^{110}\text{Cd}(\text{d},p)$ zu bestimmen. Wegen der Quadrupolwechselwirkung von $^{111}\text{CdCd}$ (BlB 72) müßte diese Messung an einem flüssigen Cd-Target durchgeführt werden, was jedoch technisch sehr schwierig ist. Eine relative Messung wurde deshalb nicht durchgeführt. Vielmehr wurde bei jeder Messung das extern angelegte Magnetfeld gemessen und so der auf KS unkorrigierte g-Faktor bestimmt. Aus dem Vergleich des g-Faktors mit den in Abschnitt 3.3 bestimmten g-Faktor ergibt sich dann die $KS(\text{CdPd})$.

Die Messungen wurden in einem Temperaturbereich von 25 K - 1410 K durchgeführt. Bis auf das bei 1410 K aufgenommene Spektrum zeigen alle Spektren ein Relaxationsverhalten der Modulationsamplitude, das mit steigender Temperatur abnimmt. Die in Tabelle 4.1 angegebene Wert der Modulationsamplitude sind bis auf den Wert bei 1410 K innerhalb von 1.5 % gleich. Der Wert bei 1410 K wurde an einem anderen Target gemessen, so daß ein direkter Vergleich mit anderen Werten nicht gegeben ist. Das Relaxationsverhalten der Modulationsamplitude deutet auf eine Quadrupolwechselwirkung des Sondenkerns ^{111}Cd mit den im Festkörper erzeugten Fehlstellen hin.

Die Quadrupolwechselwirkung des $5/2^+$ -Zustandes in ^{111}Cd mit strahlungsinduzierten Störstellen in kubischem Palladium wurde kürzlich mit der DPAD-Methode untersucht (BeH 75, Sch 75). Die bei diesen Experimenten erhaltenen Spektren zeigen für Temperaturen < 410 K für einen Teil der Sondenkerne ($\sim 3.5\%$) eine diskrete temperaturunabhängige Wechselwirkungsfrequenz, die durch einen statischen Feldgradienten gedeutet wird. Die hohe Wechselwirkungsfrequenz $e^2Qqh^{-1} = 87(2)$ MHz wird durch einen Feldgradienten erklärt, der durch einen am Cd-Fremdatom eingefangenen Punktdefekt entsteht. Dieser Quadrupolwechselwirkung ist eine temperaturabhängige Quadrupolwechselwirkung überlagert, die durch eine Verteilung von Feldgradienten hervorgerufen wird. Diese Verteilung von Quadrupolfrequenzen läßt sich durch eine lorentzförmige Frequenzverteilung um die Nullfrequenz annähern. Die Breite dieser Frequenzverteilung $\Delta(e^2Qqh^{-1})$ gibt die Temperaturabhängigkeit der Quadrupolwechselwirkung wieder. In Abb. 4.10 ist der Temperaturgang der Frequenzverteilung gezeigt.

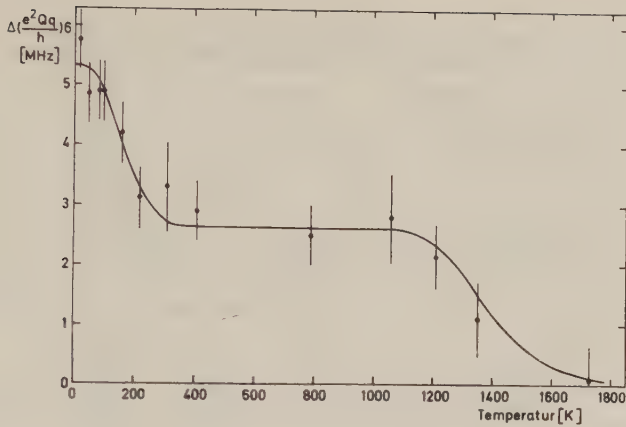


Fig. 4.10 Die Breite der Quadrupolfrequenzverteilung in Abhängigkeit von der Temperatur (aus Sch 75).

Die in der Temperaturkurve beobachtete Verringerungen der Breite der Frequenzverteilung lassen sich als Ausheilstufen des Palladiummetalls interpretieren.

Um den Einfluß der Quadrupolwechselwirkung auf die Messung der KS zu untersuchen, wurde aus den nach Formel 2.6 erhaltenen magnetischen Frequenzen und der Frequenzverteilung für die entsprechende Temperatur durch numerische Überlagerung eine Störfunktion für die kombinierte Wechselwirkung errechnet, die an die Meßwerte angepaßt wurden. Abbildung 4.11 zeigt zwei Spektren bei den Temperaturen 25 K und 620 K, die unterschiedliches Relaxationsverhalten zeigen. Für Temperaturen oberhalb 1300 K sollte keine Relaxation zu beobachten sein, da die Breite der Quadrupolfrequenzverteilung gegen Null geht. Die Meßdaten bei 1410 K bestätigen diese Annahme.

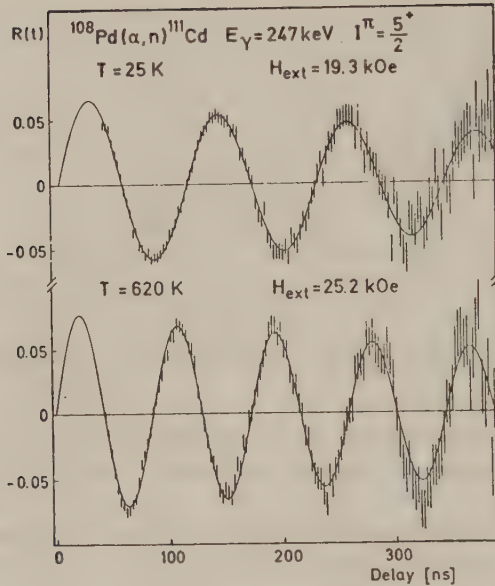


Abb. 4.11 Modulationsspektren von ^{111}Cd in Palladium nach der Reaktion $^{108}\text{Pd}(\alpha, n)$ bei den Temperaturen 25 K und 620 K.

Sie sind zusammen mit der Eichung des externen Magnetfeldes durch die Beobachtung der Modulationsfrequenz des $5/2^+$ -Zustandes in ^{19}F in Abbildung 4.5 gezeigt. Diese Spektren wurden mit den Formeln 2.4 und 2.5 ausgewertet.

Der Einfluß der Quadrupolstörung auf die Bestimmung der magnetischen Frequenz läßt sich durch den Vergleich der Frequenzen theoretischer Störfunktionen herausfinden. Die magnetische Frequenz wird dabei mit der Hauptfrequenz des Spektrums der kombinierten Wechselwirkung verglichen. Diese Rechnungen wurden für zwei Breiten der Quadrupolfrequenzverteilung durchgeführt: $\Delta(e^2qQh^{-1}) = 5 \text{ MHz}$, 2.7 MHz . Daraus ergaben sich Änderungen zur KS von $+0.3$ bzw. $+0.1 \%$.

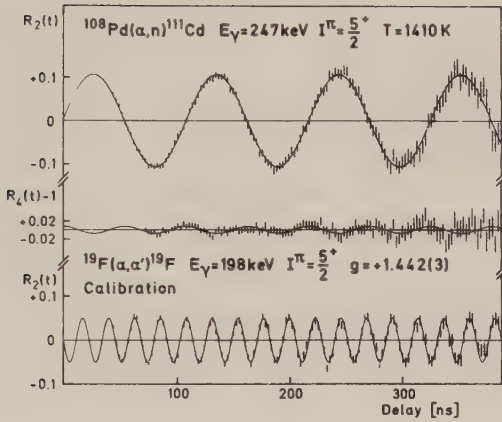


Abb. 4.12 Modulationsspektren $R_2(t)$ und $R_4(t)$ des ^{111}Cd , $5/2^+$ -Zustandes in Palladium bei einer Temperatur $T = 1410 \text{ K}$. Die Eichung des Magnetfeldes ist ebenfalls gezeigt.

In Tabelle 4.1 sind die Messungen der $\text{KS}(\text{CdPd})$, die mit der DPAD-Methode durchgeführt wurden, zusammengestellt.

Tabelle 4.1 Werte der Messungen zur $\text{KS}(\text{CdPd})$

Temperatur [K]	Anisotropie [%]	Korrektur zur KS [%]	KS [%]
25	5.5(5)	+0.3	-1.50(30)
60	5.0(5)	+0.3	-1.10(29)
100	6.0(5)	+0.3	-0.20(35)
200	6.7(5)	+0.1	-0.77(30)
300	6.8(5)	+0.1	-0.77(30)
460	6.9(5)	+0.1	-0.68(25)
620	6.8(5)	+0.1	-0.51(27)
1410	10.5(5)	-	-0.32(29)

Bei 300 K wurde die $KS(CdPd)$ zusätzlich zu den DPAD-Messungen durch eine Messung nach der DPAC-Methode ergänzt. Als Quellen für dieses Experiment dienten eine mit ^{111}In beladene Pd-Folie und eine wäßrige ^{111}In -Chlorid-Lösung. Die $KS(CdPd)$ wurde durch eine relative Messung der Larmorfrequenz bestimmt. Als Ergebnis bei 300 K erhalten wir bei der DPAC-Messung:

$$KS(CdPd) = -0.8(1) \%$$

Dieser Wert stimmt mit dem der DPAD-Messungen bei gleicher Temperatur überein ($KS(CdPd) = -0.77(28) \%$).

In Abbildung 4.13 sind die Messungen zur $KS(CdPd)$ über der Temperatur aufgetragen. Auffällig ist die große Streuung der

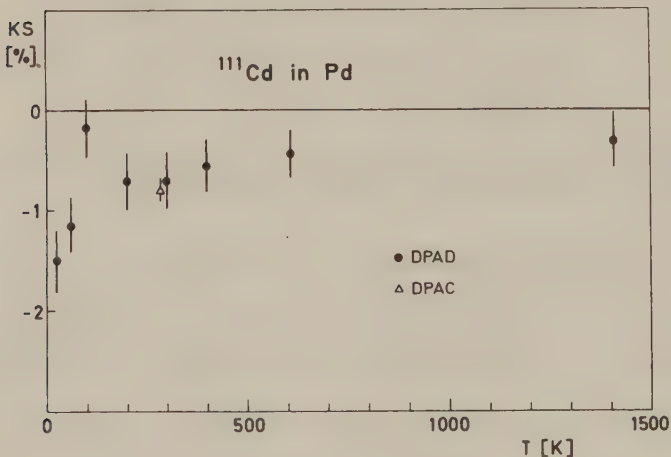


Abb. 4.13 Messungen zur Temperaturabhängigkeit der $KS(CdPd)$.

Meßdaten im Temperaturbereich $T < 100$ K. Diese Messungen wurden an einem Verdampferkryostat durchgeführt. Vermutlich ist ein nicht beobachteter systematischer Fehler durch den Versuchsaufbau der Grund für die Streuung der Meßwerte bei tiefen Temperaturen. Für die $KS(CdPd)$ wird deshalb für tiefe Temperaturen ein Wert von $KS(CdPd) = -0.8(3) \%$ abgeschätzt.

4.3.5 Messung der Knight Shift von Cadmium in Silber und Cadmium in Platin

Die KS (CdAg) wurde mit der DPAC-Methode bei 300 K gemessen. Der gemessene Wert $KS (CdAg) = +0.3(1) \%$ weicht von dem mit der magnetischen Kernresonanz an $^{111},^{113}Cd$ in silberreichen AgCd-Legierungen gemessenen Wert der KS ab. In diesen Systemen liegt die KS (AgAgCd) zwischen den Werten 0.275 % für $Ag_{40}Cd_{60}$ und 0.59 % für $Ag_{95}Cd_5$ (Dra 59). Der letzte Wert ist mit dem dieser Arbeit zu vergleichen. Es ist bemerkenswert, daß der Wert der KS (CdAg) = +0.59 % größer ist als der der reinen Metalle $KS (AgAg) = +0.524(2) \%$ und $KS (CdCd) = +0.460(1) \%$ (BoB 66).

Das System CdPt ist isoelektrisch zum System CdPd. Auch hier wurde in einer Messung die KS (CdPt) mit der DPAC-Methode bestimmt. Als Quelle diente eine mit ^{111}In beladene Pt-Folie. Das Ergebnis ist: $KS (CdPt) = -1.0(6) \%$. Trotz des großen Fehlers dieser Messung ergibt sich auch für dieses System ein negatives Vorzeichen der KS.

4.4. Diskussion der Meßergebnisse zur Knight Shift

Die Ergebnisse der Messungen zur $KS(\text{AgPd})$ und (CdPd) und ihrer Temperaturabhängigkeiten lassen sich qualitativ im Rahmen der für Palladiumlegierungen angewandten Bändermodelle beschreiben. Eine quantitative Analyse würde die genaue Kenntnis der Bandstruktur um das Fremdatom in Palladium voraussetzen, die jedoch zur Zeit nicht vorliegt. Ein Vergleich der KS von Fremdatomen in Palladium und der magnetischen Hyperfeinfelder in Nickel erlaubt eine quantitative Abschätzung der gemessenen Werte.

Nach dem Bändermodell wird die KS von Fremdatomen in Palladium durch die Beiträge K_d des d- Elektronenbandes und K_s des s-p- Elektronenbandes bestimmt. Der Beitrag K_s läßt sich aus der Messung der Temperaturabhängigkeit der KS ablesen. Für hohe Temperaturen ($T > 1000\text{K}$) entspricht die gemessene KS dem Beitrag K_s , da der Anteil χ_d der Suszeptibilität des Palladium und damit auch K_d mit wachsender Temperatur abnimmt. Die vorliegenden Messungen ergeben: $K_s(\text{AgPd}) = 0,0(3)\%$, $K_s(\text{CdPd}) = -0,3(3)\%$. Der Wert $K_s(\text{AgPd})$ ist in Übereinstimmung mit einem aus der Spin-Gitter-Relaxationszeit abgeleiteten Wert $K_s = 0,34\%$ (Nar 68). Auch für $K_s(\text{CdPd})$ wird ein positiver Wert erwartet. Im Widerspruch dazu zeigen die Messungen einen negativen Wert. Ursache dieser Diskrepanz kann ein dem Betrage nach zu großer g-Faktor ~~des~~ zu Messung benutzten $5/2$ Zustandes in ^{111}Cd sein.

Der Beitrag K_d ist von der Temperatur und von dem Auffüllungsgrad n_e abhängig. Die Messungen dieser Arbeit

zeigen das deutlich: Die KS gemessen an den Fremdatomen besitzt den gleichen Temperaturgang wie die Suszeptibilität des Gastgitters Palladium und der negative Wert der $KS(CdPd)$ ist geringer als der der $KS(AgPd)$, da das Cd-Atom im Sinne des Bändermodells ein Elektron mehr in die Legierung als das Ag-Atom einbringt. Fig.4.14. zeigt den Temperaturgang der $KS(AgPd)$, $(CdPd)$, $(PdPd)$ in einer $KS - \chi$ - Darstellung mit der Temperatur als implizitem Parameter.

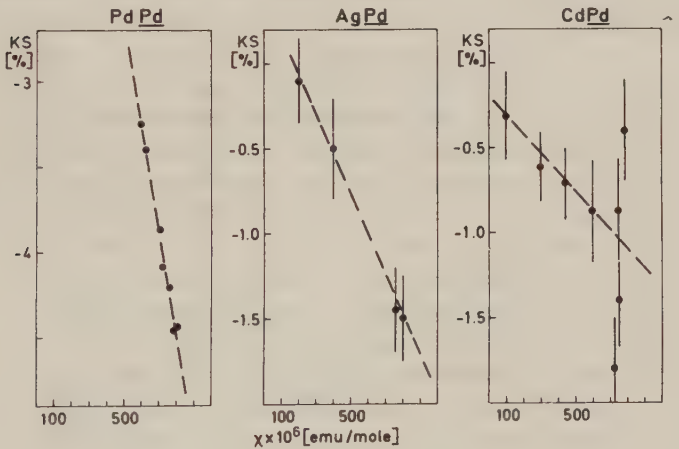


Fig.4.14. $KS - \chi$ -Darstellung für $PdPd$, $AgPd$, $CdPd$ mit der Temperatur als implizitem Parameter. Die Werte für $PdPd$ sind der Arbeit (SeG 64) entnommen.

Die Messungen dieser Arbeit zusammen mit den vorliegenden Messungen von Suszeptibilitäten und KS an Legierungen des Palladium erlauben keine Entscheidung zwischen den sich widersprechenden Ansätzen des Bändermodells (Lage der s- und d-Bänder zueinander und/oder Verbreiterung des d-Bandes bei Änderung von n_e oder "minimum polarity model"). Der Grundgedanke, ein Bändermodell zur Beschreibung der magnetischen Eigenschaften der Pd-Legierungen heranzuziehen, erscheint gerechtfertigt, wenn die Annahme eines starren, schmalen d-Bandes fallen gelassen wird.

Als Ursache des Hyperfeinfeldes an den Ag- und Cd-Atomen in Palladium kann die Spin-Polarisation der s-Elektronen durch die d-Leitungselektronen angenommen werden. Der Prozeß der "core Polarisation", der d-Elektronenlöcher am Fremdatom voraussetzen würde, scheidet aufgrund der Proportionalität von Suszeptibilität des Gastgitters und KS des Fremdatoms aus. Wären am Fremdatom d-Löcher, so wären es sicher weniger als an den Pd-Atomen, und sie würden daher eher aufgefüllt als die d-Löcher an den Pd-Atomen. Aufgrund der Proportionalität von Suszeptibilität und $KS(AgPd)$ in Pd-Ag-Legierungen (Nar 68) und der Messungen der Temperaturabhängigkeiten der KS ($AgPd$) und der $KS(CdPd)$ scheidet diese Wechselwirkung als Ursache der Hyperfeinfelder an Ag- und Cd-Kernen in Palladium aus. Auch die Überlappungspolarisation sollte nicht wesentlich zur $KS(AgPd)$ und $(CdPd)$ beitragen, da die Radien der Fremdatome und des Gastgitters sich nur gering unterscheiden.

Der Beitrag der Leitungselektronenpolarisation zum Hyperfeinfeld von Fremdatomen in den 3d-Ferromagneten

und zur KS in Palladium ist kürzlich von Campbell und Blandin im Rahmen eines RKKY-Modelles, das den Einfluß der Ladung des s-p-Fremdatomes berücksichtigt, behandelt worden (CaB 75). Die Ergebnisse geben die Systematik der Hyperfeinfelder richtig wieder und zeigen, daß für Fremdatome mit $\Delta V < 5$ der Beitrag der Leitungselektronenpolarisation der Überwiegende Anteil zum Hyperfeinfeld ist. Der Vorzeichenwechsel der Hyperfeinfelder in der Systematik wird bestimmt durch die Summe der positiven und negativen Beiträge zur Leitungselektronenpolarisation durch die nächsten und übernächsten Nachbaratome des Fremdatoms. In Fig.4.15. sind die magnetischen Hyperfeinfelder in Nickel und die KS in Palladium für die Fremdatome Rh,Pd,Ag,Cd,Sn zusammengestellt. Die Systematik legt nahe, für die magnetischen Hyperfeinfelder und die KS die gleichen Wechselwirkungsmechanismen anzunehmen.

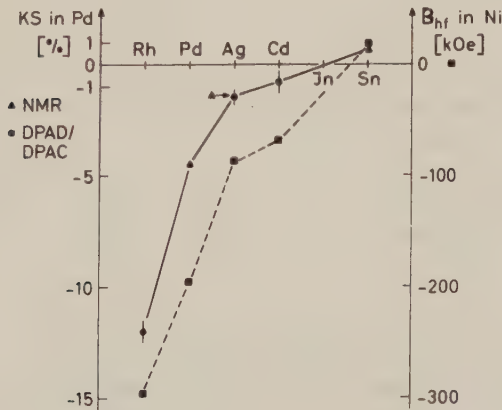


Fig.4.15. Magnetische Hyperfeinfelder in Nickel und KS in Palladium. Die Werte für B_{hf} sind der Tabelle (KoS 71) entnommen.

Die Ähnlichkeit der magnetischen Eigenschaften der isoelektrischen Metalle Nickel und Palladium legt nahe, mit Hilfe der vorliegenden Daten der magnetischen Hyperfeinfelder in Nickel die KS von Fremdatomen in Palladium abzuschätzen. Das magnetische Hyperfeinfeld läßt sich schreiben als Vielfaches α des magnetischen Momentes des Gastgitteratoms μ_h .

$$B_{hf} = \alpha \cdot \mu_h \quad (4.7.)$$

Die Konstante α ist dabei spezifisch für ein bestimmtes Fremdatom. Dieser Ansatz beschreibt die Hyperfeinfelder der s-p Metalle in den 3d-Ferromagneten zufriedenstellend. Für Nickel gilt $\mu_{Ni} = 0,6 \cdot \mu_B$. Das magnetische Moment des Palladiumatoms ist gegeben durch:

$$\mu_{Pd} = \chi \cdot B_{ext} \cdot N_L^{-1}$$

woraus sich für das innere Feld B_{int} in Palladium ergibt:

$$B_{int} = \alpha \cdot \mu_{Pd}$$

Das am Kernort in Palladium wirkende Feld B_{eff} ist gegeben durch:

$$\begin{aligned} B_{eff} &= B_{ext} (1 + KS) \\ &= B_{ext} + B_{int} = B_{ext} (1 + \alpha \chi N_L^{-1}) \end{aligned}$$

Die KS läßt sich schreiben:

$$KS = \alpha \cdot \chi \cdot N_L^{-1} \quad (4.8.)$$

Diese einfache Beziehung gilt für den starken Paramagneten Palladium, bei dem der paramagnetische Anteil K_d der dominierende Beitrag zur KS ist. Der Faktor

entspricht dem in (4.7.) eingeführtem Faktor. Eine Abschätzung nach (4.8.) ergibt mit den Werten der magnetischen Hyperfeinfelder ($B_{\text{hf}}(\text{AgNi}) = -87(8) \text{ kOe}$, $B_{\text{hf}}(\text{CdNi}) = -68,6(1,5) \text{ kOe}$) und der Suszeptibilität $\chi = 720 \cdot 10^{-6} \text{ emu/mole}$ für $\text{KS}(\text{AgPd}) = -1,5\%$ und $\text{KS}(\text{CdPd}) = -1,1\%$. Beide Ergebnisse stimmen in der Größenordnung mit den experimentellen Ergebnissen dieser Arbeit überein.

5. Schlußbemerkung

In dieser Arbeit wurden isomere Zustände in Silber- und Cadmiumisotopen und ihre Anwendung zur Messung der KS von Ag- und Cd-Atomen in Palladium beschrieben. Der durch die kurze Lebensdauer der isomeren Kernzustände bedingte Fehler der DPAD-Messungen ist relativ zu den bei Kernresonanzexperimenten typischerweise auftretenden Fehlern groß. Eine Verbesserung der Genauigkeit wurde durch die Benutzung der Methoden der stroboskopischen Beobachtung der γ -Winkelverteilung (ChM 70) oder der Methode der Störung der γ -Winkelverteilung durch Hochfrequenzeinstrahlung (OIM 68) mit isomeren Kernzuständen größerer Lebensdauern ($T_{1/2} \sim 500$ ns - 20 ms) erreicht. Ein Experiment zur Bestimmung der KS mit beiden Methoden liegt vor: KS (GaGa) = +0.53(6) % (EcH 75, RiB 72). Eine Nachmessung der KS (CdPd) im Bereich hoher Temperaturen mit Hilfe des $11/2^-$ -Zustandes im ^{109}Cd ($T_{1/2} = 8,9$ s) und einer der genannten Methoden erscheint wegen der Unsicherheit der vorliegenden DPAD-Messungen sinnvoll.

Die Nützlichkeit der in dieser Arbeit vorgestellten Ag- und Cd-Sondenkerne zur Untersuchung der magnetischen Eigenschaften der Legierungen des Palladium mit 3d-Ferromagneten konnte in ersten Experimenten gezeigt werden. Bei der Legierung $\text{Pd}_{95}\text{Fe}_5$ zeigte sich eine starke Temperaturabhängigkeit des Hyperfeinfeldes am Ag-Atom.

Literaturverzeichnis

- AeA 54 H. Aepli, H. Albers-Schönberg, H. Frauenfelder,
 P. Scherrer,
 Helv. Phys. Acta 27, 547 (1954)
- AEM 64 N.E. Alekseevski, G.E. Karstens, V.V. Mozahev,
 Soviet Phys. JETP 19, 1333 (1964)
- AlA 53 K. Alder, H. Albers-Schönberg, E. Heer, T.B. Novey
 Helv. Phys. Acta 26, 761 (1953)
- ASH 54 H. Albers-Schönberg, E. Heer, T.B. Novey, P. Scherrer
 Helv. Phys. Acta 27, 547 (1954)
- BBL 73 J. Bleck, R. Butt, K.H. Lindemberger, W. Ribbe,
 W. Zeitz
 Z. Physik 263, 169 (1973)
- BeB 69 I. Ben Zvi, A.E. Blaugrund, Y. Dar, G. Goldring,
 Y. Wolfson
 Nucl. Phys. A135, 153 (1969)
- Bee 66 J.R. Beeler
 Phys. Rev. 150, 470 (1966)
- BEH 75 H. Bertschat, O. Echt, H. Haas, E. Recknagel, E. Schlodder
 B. Spellmeyer
 Hypf. Interactions 1, 251 (1975)
- BeR 74 H. Bertschat, Dissertation FU Berlin 1974

- BHP 74 H. Bertschat, H. Haas, F. Pleiter, E. Recknagel,
E. Schlodder, B. Spellmeyer
Z. Physik 267, 299 (1974)
- BHA 75 H. Bertschat, H. Haas, F. Pleiter, E. Recknagel,
E. Schlodder, B. Spellmeyer
Phys. Rev. B12, 1 (1975)
- BHL 69 J. Bleck, D.W. Haag, W. Leitz, R. Michuelsen,
W. Ribbe, F. Sichel Schmidt
Nucl. Phys. A123, 65 (1969)
- BKH 72 A. Buřanda, K. Krolas, A.Z. Hyrankiewicz
Joint Inst. Nuclear Res., Dubna, UdSSR P 14,
6701 (1972)
- BIB 72 J. Bleck, R. Butt, H. Haas, W. Ribbe, Z. Zeitz;
Phys. Rev. Lett. 29, 1371 (1972)
- Ble 701 J. Bleck, Dissertation FU Berlin, 1970
- BIF 71 D.H. Bloch, D. Frosch, E.J. Jaeschke, H. Pauli,
E. Rinsdorf
in: Hyperfine Interactions in Excited Nuclei,
ed. G. Goldring and R. Kalish (Gordon and Breach ,
New York) 356 (1971)
- B1H 69 J. Bleck, D.H. Haag, W. Ribbe
Nucl. Inst. Meth. 67, 169 (1969)
- BoB 66 F. Borsa, R.G. Barnes,
J. Phys. Chem. Solids 27, 567 (1966)

- BoH 63 E.C.O. Bonacalza, G.B. Holm
Phys. Lett. 4, 343 (1963)
- Bor 67 H. Borodowsky,
Z. Naturforschung 22a, 130 (1967)
- BrR 72 C.E. Brient, P.J. Riley, H. Seitz, S. Sens
Phys. Rev. C6, 1837 (1972)
- BrV 73 P. Brill, J. Voitländer
Ber. d. Bunsengesellschaft 77, 1092 (1973)
- BrV 75 P. Brill, J. Voitländer
Z. Physik, B20, 369 (1975)
- CaB 75 I.A. Campbell, A. Blandin
J. Magnetism and Magnetic Materials 1, 1 (1975)
- ChM 70 J. Christiansen, H.-E. Mahnke, E. Recknagel,
D. Riegel, G. Schatz, G. Weyer, W. Witthuhn
Phys. Rev. C1, 613 (1970)
- CLY 64 A.M. Clogston, V. Jaccarino, Y. Yafet
Phys. Rev. 134, A650 (1964)
- CMP 62 A.M. Clogston, B.T. Matthias, M. Peter, J.H. Williams,
E. Corenzwit, R.C. Sherwood
Phys. Rev. 125, 541 (1962)
- DaF 63 E. Daniel, J. Friedel
J. Phys. Chem. Solids 24, 1601 (1963)
- Dra 58 L.E. Drain
Phil. Mag. 21, 484 (1958)

- Dra 59 L.E. Drain
 Phil. Mag. 4, 484 (1959)
- Dra 63 L.E. Drain
 J. Phys. Chem. Solids 24, 379 (1963)
- Dra 64 L.E. Drain
 Proc. Phys. Soc. 83, 755 (1964)
- Dra 67 L.E. Drain
 Met. Rev. 119, 195 (1967)
- EcH 75 O. Echt, H. Haas, E. Recknagel, E. Schlodder,
 B. Spellmeyer
 Contribution to the International Meeting on
 Hyperfine Interactions, Leuven, 1975, im Druck
- EgU 68 J. Eggs, K. Ulme
 Z. Phys. 213, 293 (1968)
- ElE 68 Th. W. Elze, T.v. Egidy, H.U. Fremd, B.D. Dutta,
 W. Kaiser
 Z. Physik 209, 497 (1968)
- EsR 67 I.V. Estulin, I.N. Rozantsev, P.T. Prokofev,
 V.A. Bondavenko
 Sov. J. Phys. 5, 819 (1967)
- FrS 65 H. Frauenfelder, R.M. Steffen
 in: Alpha-, Beta-, and Gamma Ray Spectroscopy
 ed.: K. Siegbahn, Vol. 2, 997
 (North Holland, Amsterdam, 1965)

- GeM 73 B.D. Geelhood, H.N. McDermott
Phys. Lett. 46A, 211 (1973)
- Ger 58 D. Gerstenberg,
Ann. Phys. (Germany) 2, 236 (1958)
- GiG 60 J.B. Gibson, A.N. Goland, H. Hilgram, G.H. Vinegard
Phys. Rev. 120, 1229 (1960)
- GuA 71 S.C. Gujartki, J.M. d'Auria, R.G. Korteling
Can. J. Phys. 49, 747 (1971)
- GuG 72 H.S. Gutowsky, B.R. Garvey
J. Chem. Phys. 20, 1472 (1952)
- HaB 73 U. Hagemann, H.F. Brickmann, W.D. Fromm, C. Heiser,
H. Rotter
Jahresbericht 1973, report 2fK-262, Rossendorf/
Dresden (1973)
- HaH 67 M. Cordey Hayes, I.R. Harris
Phys. Lett 34A, 80 (1967)
- HaM69 C. Hauley, M.N. McDermott
Phys. Lett. 29A, 103 (1969)
- HaT 69 A. Hahn, W. Treutmann
Z. Angew. Phys. 26, 135 (1969)
- Hec 76 D. Hechtfischer
Z. Pzhyik B23, 255 (1976)

- HoM 52 F.E. Hoare, J.C. Matthews
Proc. Roy. Soc. (London) A212, 137 (1952)
- HoY 57 I.E. Hoare, B. Yates
Proc. Roy. Soc. (London) A240, 42 (1957)
- Jac 64 V. Jaccarino,
Proc. of the Int. Conf. on Magnetism, Nottingham
(1964), p. 162
- KaS 70 W.R. Kane, G. Scharff-Goldhaber
Phys. Rev. C2, 314 (1970)
- KaW 75 Hyperfine Interactions Studied in Nuclear Reactions
and Decay, Vol. I,II
ed.: E. Karlsson, R. Wäppling
(Almqvist and Wiksell, Stockholm-New York 1974)
- KiS 63 L.S. Kisslinger, R.A. Sorensen
Rev. Mod. Phys. 35, 853 (1963)
- KiV 70 S. Kirkpatrick, B. Velmick, H. Ehrenreich
Phys. Rev. B1, 3250 (1970)
- Kni 56 W.D. Knight
Solid State Phys. 2, 93 (1956)
- Kni 59 W.D. Knight
Phys. Rev. 70, 474 (1959)
- KoA 63 S. Kobayashi, K. Asayama, J. Itoh
J. Phys. Soc. Japan 18, 1735 (1963)

- KoA 72 S. Kohnzuki, K. Asayama
J. Phys. Soc. Japan 32, 1237 (1972)
- Kop 58 H. Kopfermann,
Nuclear moments (Academic Press, New York)
450 (1958)
- KoS 71 T.A. Koster, D.A. Shirley
in: Hyperfine Interactions in Excited Nuclei
ed. G. Goldring and R. Kalish, Vol. 4 (Gordon and
Breach, New York, 1971), p. 1239
- KrL 74 H. Krüger, O. Lutz, A. Schwenk, G. Stricker
Z. Physik 266, 233 (1974)
- Kro 75 K. Krolas , private Mitteilung
- LaE 68 N.D. Lang, H. Ehrenreich
Phys. Rev. 168, 605 (1968)
- Lam 41 W. Lamb,
Phys. Rev. 60, 817 (1941)
- LaM 66 D.J. Lam, K.M. Myles
J. Phys. Soc. Japan 21, 1503 (1966)
- LaM 69 N.S. Lanlainen, M.N. McDermott
Phys. Rev. 177, 1615 (1969)
- MaB 63 E. Matthias, L. Boström, A. Maciel, M. Salomon,
T. Lindqvist
Nucl. Phys. 40, 656 (1963)

- MaZ 57 M. Mazari
MIT. LNS Progr. Report (1957)
- MaW 69 M. Mah nig, E. Wicke
Ber. d. Bunsengesellschaft 24a, 1258 (1969)
- MeR 73 M. Meyer, R. Rongny, R. Berand, J. Daniere
in: Proc. Int. Von. on Nuclear Physics, ed. J. de Boer,
H.J. Mang (North Holland, Amsterdam) 289 (1973)
- MFD 70 F.M. Mueller, A.J. Freeman, J.O. Dimmrock,
A.M. Furdyna
Phys. Rev. B1, 4617 (1970)
- MoP 67 H. Montgomery, G.P. Pells, E.M. Wray
Proc. Roy. Soc. London A301, 261 (1967)
- MSF 68 J. Morgenstern, J.W. Schmidt, G. Flügge, H. Schmidt
Phys. Lett. 27B, 370 (1968)
- NAH 58 H. Noya, A. Arima, H. Norie
Prog. Theor. Phys. Suppl. 18, 33 (1958)
- Nar 67 in Dra 67
- Nar 68 A. Narath
J. Appl. Phys. 39, 553 (1968)
- NaW 71 A. Narath, H.T. Weaver
Phys. Rev. B3, 616 (1971)

- NoM 71 C. Norris, H.P. Myers
J. Phyw. F1, 62 (1971)
- NyJ 73 B. Nyman, A. Johansson, W. Dietrich, A. Backlin,
H. Petterson, B. Svahn, C.O. Lannergard
Physica Scripta 7, 265 (1973)
- OIM 68 B. Olsen, E. Matthias, R.M. Steffen
UIIP-583 Institut f. Physik, Uppsala 1968
- OSa 71 M.E. Ortis Salazar, Thesis, Universidad Nacional
Autonoma de Mexico, 1971
- RaR 73 R.S. Raghavan, P. Raghavan, H.J. Friedt,
Phys. Rev. Lett. 30, 10 (1973)
- RaM 69 G.N. Rao, E. Matthias, D.A. Shirley
Phys. Rev. 184, 325 (1969)
- ReH 70 R.C. Reno, C. Hohenemser
Phys. Rev. Lett. 25, 1007 (1970)
- ReS 70 B.S. Reehal, R.A. Sorensen
Phys. Rev. C2, 819 (1970)
- RiB 72 D. Riegel, N. Bräuer, B. Focke, B. Lehmann,
K. Nishiyama
Phys. Lett. 41A, 459 (1972)
- RiB 73 D. Riegel, N. Bräuer, F. Dimmling, B. Focke,
K. Nishiyama
Phys. Lett. 468, 170 (1973)

- RiM 71 J. Rivier, R. Moret
Nucl. Phys. A177, 379 (1971)
- Sch 75 E. Schlodder, Diplomarbeit HMI 1975
- ScR 67 A.I. Schindler, M.J. Rice
Phys. Rev. 164, 759 (1967)
- SeG 64 J.A. Seitchik, A.C. Gossard, V. Jaccarino
Phys. Rev. 136, A1119 (1964)
- Sem 72 W. Semmler, Diplomarbeit HMI Berlin 1972
- ShL 75 V.S. Shirley, C.M. Lederer
in KaW 75, vol. 2
- SGJ 64 J.A. Seitchik, A.C. Gossard, V. Jaccarino
Phys. Rev. 136, A1119 (1964)
- Sno 71 R.J. Snodgrass
Phys. Rev. B3, 3738 (1971)
- Sor 64 R.A. Sorensen
Phys. Rev. 133, B281 (1964)
- Sov 67 P. Soven
Phys. Rev. 156, 809 (1967)
ibid. 178, 1136 (1969)
- SpS 64 P. Sparrman, T. Sundström, J.O. Lindström
Ark. Fys. 26, 479 (1964)

- Ste 56 R.M. Steffen
Phys. Rev. 103, 116 (1956)
- Ste 71 R.M. Steffen
in: Perturbed Angular Correlations in Nuclear
Deintegrations
ed.: B. van Nooijen, H. van Krugten
(Rotterdam, 1971)
- StW 71 G.M. Stocks, R.W. Williams, S.J. Faulkner
Phys. Rev. B4, 4390 (1971)
- StW 73 G.M. Stocks, R.W. Williams, S.J. Faulkner
J. Phys. F3, 1688 (1973)
- StZ 56 R.M. Steffen, W. Zobel
Phys. Rev. 103, 126 (1956)
- Tak 75 H. Taketani, private Mitteilung
- TeK 71 J. Kanamori, K. Terakura
Prog. Theor. Phys. 46, 1007 (1971)
- TeY 74 K. Terakura, N. Yokoyama, S. Kohzuki, K. Asayama
J. Phys. Soc. Japan 36, 130 (1974)
- THK 50 C.H. Towns, C. Herring, W.D. Knight
Phys. Rev. 77, 852 (1950)
- VuP 65 J.J. Vuillemin, M.G. Priestley
Phys. Rev. Letters 14, 307 (1965)

- Vui 65 J.J. Vuillemin
Phys. Rev. 144, 396 (1966)
- WaC 70 W.W. Warren, W.G. Clark
Phys. Rev. 31, 24 (1970)
- Win 67 P. Winkler
Report ZfK-126, Rossendorf (1967)
- WoW 57 J.E. Worsham, M.K. Wilkinson, C.G. Shull
J. Phys. Chem. Solids 3, 303 (1957)
- Wuc 52 J. Wucher
Ann. Phys. (France) 7, 317 (1952)
- Yan 67 T. Yamazaki
Nucl. Data A3, 1 (1967)
- Zei 74 W.-D. Zeitz, Dissertation, FU Berlin 1974

Diese Arbeit entstand im Bereich Kern- und Strahlenphysik des Hahn-Meitner-Institutes Berlin.

Den Damen und Herren des Bereiches danke ich für ihre vielfältige Hilfe. Für zahlreiche Diskussionen und Hilfe bei den Messungen danke ich insbesondere den Herren H. Bertschat, O. Echt, H. Haas, U. Leithäuser, K.H. Lindenberger, W. Leitz, K.H. Maier, F. Pleiter, E. Recknagel und E. Schlodder.

Lebenslauf

- 1943 am 16.7. geboren in Lage/Lippe, Sohn des Bäckermeisters Gustav Spellmeyer und seiner Frau Helene, geb. Löhr
- 1950-54 Grundschule in Lage
- 1954-64 mathem.-naturw. Gymnasium Leopoldinum II in Detmold
- 1964-70 Studium der Physik, Mathematik und Chemie an der Freien Universität Berlin
- 1970 1. Staatsexamen in den Fächern Physik und Mathematik mit der Arbeit "Experimente an einer komprimierten Plasmasäule"
- ab 1970 Wiss. Angestellter am Hahn-Meitner-Institut, Bereich Kern- und Strahlenphysik. Mitarbeit in der Arbeitsgruppe "Kernmomente und innere Felder", aus der die vorliegende Arbeit entstand. Ab 1975 Mitarbeit in der Arbeitsgruppe VICKSI.

